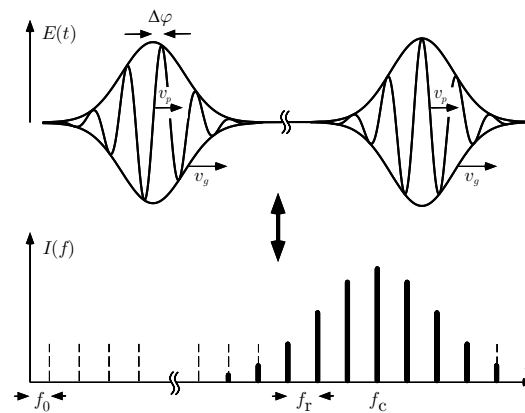


Präzise optische Frequenzmessungen mit modengekoppelten Lasern

Dissertation der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München



vorgelegt von
Jörg Reichert
aus Ludwigshafen am Rhein

München, den 25.4.2000

1. Gutachter: Prof. Dr. T. W. Hänsch
2. Gutachter: Prof. Dr. D. Habs

Tag der mündlichen Prüfung: 24. Juli 2000

Zusammenfassung

In den letzten Jahren wurden dramatische Fortschritte in der Entwicklung optischer Frequenzstandards auf der Basis von gefangenen einzelnen Ionen und scharfen optischen Resonanzen in Molekülen und Atomen, wie der $1S$ - $2S$ Resonanz in Wasserstoff, erzielt. Für den Bau von optischen Atomuhren, deren Präzisions-Potential mit bis zu 10^{-18} weit über das der besten heutigen Cäsium-Uhren hinausgeht, fehlte bislang ein Uhrwerk, eine präzise, zuverlässige und kompakte Methode der Konversion von optischen Frequenzen in Radiofrequenzen. Auch genaueste Messungen optischer Frequenzen durch direkten Vergleich mit Cäsium-Atomuhren im Mikrowellenbereich benötigten ein solches Bindeglied zwischen den um einige Größenordnungen unterschiedlichen Frequenzen. Ein solches konnten bisher nur aufwendige harmonische Frequenzketten für einige wenige Frequenzen bereitstellen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine vielseitig einsetzbare und wesentlich einfachere neue Technik entwickelt, Radiofrequenzen und optische Frequenzen phasenkohärent miteinander zu vergleichen. Der von einem modengekoppelten Femtosekundenlaser emittierte Kamm von Frequenzen mit perfekt gleichmäßigem Abstand wird wie ein Lineal zur Messung großer Frequenzdifferenzen zwischen zwei vielfachen (harmonischen oder subharmonischen) Frequenzen eines Lasers verwendet. Auf diese Weise kann die Frequenz des Lasers selbst gemessen werden. Ein solcher Frequenzkamm als Spektrum eines periodischen kohärenten Pulszuges multipliziert effektiv die Radiofrequenz der Pulsrepetition, welche den Modenabstand bestimmt, mit der Anzahl von 10^5 bis 10^6 Moden auf die Größe eines optischen Frequenzintervalls. Die Zuverlässigkeit dieser Methode konnte im Rahmen der experimentellen Auflösung verifiziert werden.

Durch effiziente spektrale Verbreiterung der Pulse in einer optischen Faser kann die nutzbare Reichweite des Kammes wesentlich ausgedehnt werden. Auf diese Weise wurde die Vakuum-Ultraviolett-Frequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in Wasserstoff ($\lambda = 121.6$ nm) durch Überbrückung eines Intervalls von 45.2 THz in einem direkten Vergleich mit einer kommerziellen Cäsium-Atomuhr neu bestimmt: $f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187.29(37)$ kHz. Dies stellte die präziseste Messung einer optischen Frequenz dar. In einem anschließenden Experiment [Nie00a] mit identischem Aufbau, in dem nun aber eine portable Cäsium-Fontänenuhr der Gruppe von Prof. A. Clairon und Prof. C. Salomon, Paris, als Frequenzstandard verwendet wurde, konnte eine Genauigkeit von 1.8×10^{-14} erreicht werden. Dadurch wurde die erreichte Präzision optischer Frequenzmessungen nochmals um etwa eine Größenordnung gesteigert.

In einer weiteren Frequenzmessung wurde der Modenkamm zur Überbrückung einer großen Lücke von 18 THz in der bestehenden harmonischen Frequenzkette eingesetzt. Die Absolut-

frequenz der D_1 Linie in Cäsium konnte mit $f_{D1} = 335\,116\,048\,807(41)$ kHz neu gemessen werden und ist damit um einen Faktor 360 genauer als bisher bekannt. Dieser Wert bildet einen wichtigen Beitrag für eine neue experimentelle Bestimmung der Feinstrukturkonstanten: $\alpha^{-1} = 137.035\,992\,2(40)$.

In Zusammenarbeit mit den Arbeitsgruppen von Prof. H. Walther, Garching, und von Prof. S. N. Bagayev, Novosibirsk, wurde die Frequenz des $5s^2\,^1S_0 - 5s5p\,^3P_0$ Übergangs eines einzelnen Indium⁺-Ions in einer Radiofrequenz-Falle, eines aussichtsreichen Kandidaten für eine optische Atomuhr, neu bestimmt: $f_{\text{In}^+} = 1\,267\,402\,452\,914(40)$ kHz. Gegenüber früheren Messungen wurde dabei eine um mehr als einen Faktor 1000 höhere Genauigkeit erreicht. Diese Messung, die noch vor der vollständigen Entwicklung der Technik der Frequenzmessung mit modengekoppelten Lasern durchgeführt wurde, verwendete zur Überbrückung einer Frequenzlücke von 1.4 THz einen „optischen Frequenzkamm-Generator“ (OFCG) [Kou95]. Weitere geplante Experimente mit einer kompakten Frequenzkette auf Basis eines modengekoppelten Lasers lassen ein Vordringen in einen Genauigkeitsbereich von 10^{-15} in nächster Zukunft erwarten.

Mit den hier vorgestellten Experimenten wurde das Prinzip der präzisen Frequenzkonversion zwischen optischem Bereich und Radiofrequenzbereich mittels ultrakurzer Pulse erstmals realisiert. Neuere Experimente legen ein enormes Potential an weitergehender Vereinfachung des Systems nahe, das einen praktikablen Einsatz bei den präzisesten optischen Frequenzmessungen der Zukunft erlauben wird. Diese werden nicht nur fundamentalen physikalischen Fragen, wie z. B. der Konstanz von Naturkonstanten, auf den Grund gehen können, sondern versprechen auch vielseitige technische Anwendungen.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Leitfaden durch diese Arbeit	3
2	Optische Frequenzmessung mit ultrakurzen Lichtpulsen	8
2.1	Methoden optischer Frequenzmessung	9
2.2	Frequenzmessung mit dem modengekoppelten Laser	12
2.3	Der Frequenzkamm	15
3	Kurze Pulse, Dispersion und Nichtlinearitäten	20
3.1	Dispersion von ultrakurzen Pulsen	20
3.2	Kompensation der Gruppengeschwindigkeitsdispersion	25
3.3	Propagation eines Pulses durch ein nichtlineares Medium	28
3.4	Selbst-Phasenmodulation	30
3.5	Zusammenspiel zwischen Dispersion und Selbst-Phasenmodulation	32
3.6	Nichtlineare Selbst-Fokussierung: optischer Kerr-Effekt	35
4	Elemente der Frequenzmessung mit modengekoppelten Lasern	38
4.1	Funktionsweise eines modengekoppelten Lasers	38
4.2	Stabilisierung von Repetitionsfrequenz und Absolutfrequenz des Femtosekundenkamms	42
4.3	Spektrale Verbreiterung der Pulse in Lichtwellenleitern	46
4.4	Bestimmung der Modenanzahl in einem Frequenzintervall	50
4.5	Phasenstabilisierung	54

4.6	Rauscharme Detektion von Schwebungssignalen	57
4.7	Optische Frequenzintervall-Teiler	59
4.8	Der optische Frequenzkamm-Generator (OFCG)	61
4.9	Experimente zur Integrität des Frequenzkamms	63
5	Bestimmung der Absolutfrequenz der Cs D_1 Linie	71
5.1	Kurzfassung	71
5.2	Die Feinstrukturkonstante α	72
5.3	Die Frequenzkette zur Messung der D_1 Linie	73
5.4	Das Sättigungsspektrometer	76
5.5	Ergebnisse der Messung	77
6	Phasenkohärenter Vergleich von Vakuum-UV-Frequenzen und Radiofrequenzen: Der $1S$-$2S$ Übergang in Wasserstoff.	82
6.1	Kurzfassung	82
6.2	Frequenzmessungen am Wasserstoff und QED-Tests	83
6.3	Die Frequenzkette zur Messung des $1S$ - $2S$ Übergangs	87
6.4	Das Wasserstoff-Spektrometer	92
6.5	Systematische Effekte der Spektroskopie	94
6.6	Auswertung der Daten	96
7	Bestimmung der Frequenz des $\text{In}^+ 5s^2 \ ^1S_0 - 5s5p \ ^3P_0$ Übergangs	103
7.1	Spektroskopie des In^+ -Ions	104
7.2	Frequenzmessung	105
7.3	Ergebnisse der Messung	108
8	Ausblick	110
A	In den Experimenten verwendete Frequenzintervall-Teiler	115
B	Die Propagations-Gleichung für Pulse	117
C	Die Frequenzketten-Gleichung	119

D	Kalibrierung der Cs-Uhr mit dem GPS-Zeitsignal	123
E	Bei “Physical Review Letters” abgedruckter Artikel	127
	Literaturverzeichnis	133

Kapitel 1

Einleitung

„Während man niemals mit Sicherheit behaupten kann, daß die Zukunft der Physik nicht noch erstaunlichere Wunder auf Lager hätte als die der Vergangenheit, scheint es doch wahrscheinlich, daß die grundlegenden Prinzipien nun auf sicherem Grund stehen und daß weitere Fortschritte hauptsächlich eine strenge Anwendung dieser Prinzipien auf alle Phänomene bringen wird, die neu beobachtet werden. [...] Hier ist es, wo die Wissenschaft der Messung ihre Wichtigkeit zeigt — wo quantitative Ergebnisse begehrt sind als qualitative Arbeit. Ein hervorragender Physiker hat einmal bemerkt, daß man die zukünftigen Wahrheiten der Physik in der sechsten Nachkommastelle suchen müsse.“

Mit diesen Worten beschrieb 1894 A. A. Michelson die Situation der Physik in seiner Zeit (zitiert in [Kin96]). Obwohl sich das hier gezeichnete Bild angesichts der atemberaubenden Entdeckungen des zwanzigsten Jahrhunderts und der Revolutionierung des physikalischen Weltbilds durch die Entwicklung der Quantenmechanik wie ein Scherz anhört, stehen wir heute, am Tor zum 21. Jahrhundert, anscheinend vor einer ähnlichen Situation, nur mit ein paar Stellen mehr hinter dem Komma. Cäsium-Atomuhren mit einer dem menschlichen Verstand kaum begreiflichen Genauigkeit scheinen schon jetzt weit jenseits jeder praktisch erforderlichen Präzision zu ticken, und Präzisionsmessungen — und besonders Frequenzmessungen — scheinen in immer neuen Rekorden weitere Dezimalstellen ohne Anwendung zu produzieren. Und zukünftige optische Atomuhren, für die in dieser Arbeit ein „Uhrwerk“ entwickelt wurde, sollen diese Präzision weiter steigern.

Jedoch durchdringt die Genauigkeit der Atomuhren ständig unbemerkt unser tägliches Leben: Die Synchronisation von Netzwerken für Telekommunikation und weltweiten Austausch von Daten wäre ohne präzise Frequenzstandards nicht denkbar, ebenso wie die Navigation von Flugzeugen, Schiffen und Automobilen in immer höherem Maße Gebrauch von einer präzisen Ortsbestimmung mit Hilfe der Cäsium-Uhren des „Global Positioning System“ (GPS) macht. Eine wesentliche Verbesserung der Genauigkeit der Atomuhren, und damit letztendlich auch

des Datendurchsatzes von Netzwerken oder des GPS-Systems, wird von optischen Atomuhren mit ultrakalten Atomen [Hub99] oder einzelnen in einer Ionenfalle gefangenen Ionen [Bec00] erwartet. Basierend auf scharfen Resonanzen bei hohen optischen Frequenzen sind Genauigkeiten bis in den Bereich von 10^{-18} zu erwarten.

In der Physik können Präzisionsmessungen von optischen Frequenzen Antworten auf noch offene fundamentale Fragen geben wie zum Beispiel der Gültigkeit der CPT-Symmetrie zwischen Materie und Antimaterie. Damit könnte vielleicht auch der Grund der Asymmetrie der Massenverteilung zugunsten der Materie im uns bekannten Teil des Universums geklärt werden. Experimente am CERN zum spektroskopischen Vergleich von Wasserstoff und Antiwasserstoff, unter anderem durch die Gruppe von Prof. T. W. Hänsch, sind zur Zeit in Vorbereitung [Ead99]. Auch die Suche nach möglichen kleinen zeitlichen Variationen von Naturkonstanten [Dzu99], die von unifizierten Theorien wie der „string“-Theorie oder der M-Theorie nahegelegt werden, hat nur Aussicht auf eventuellen Erfolg mit Frequenzmessungen hoher Genauigkeit, wie sie von zukünftigen optischen Atomuhren erreicht werden kann. Nicht zuletzt haben auch neuere Berechnungen der Quantenelektrodynamik gebundener Systeme [Mal98] Fragen nach deren Gültigkeit in höherer perturbativer Ordnung aufgeworfen, bei deren Klärung eine präzisere Messung der $1S$ - $2S$ Übergangs-Frequenz in Wasserstoff eine Schlüsselrolle spielen kann. Weiterhin könnten auch zahlreiche praktische Anwendungen optischer Frequenzmessungen in anderen Gebieten der Physik, z. B. der Astronomie, von deren Präzision profitieren.

Bisher beschränkten sich Frequenzmessungen höchster Präzision im wesentlichen auf Radio- und Mikrowellenfrequenzen, die aufgrund ausgereifter Technologie direkt mit der Definition der SI-Sekunde — realisiert durch Cäsium-Atomuhren — verglichen werden konnten. Ein direkter Vergleich optischer Frequenzen mit der Mikrowellenfrequenz einer Atomuhr erforderte jedoch, um etwa fünf Größenordnungen unterschiedliche Frequenzen ineinander zu konvertieren. Nur einige wenige optische Frequenzen konnten bisher durch sogenannte harmonischen Frequenzketten erreicht und mit Radiofrequenz-Genauigkeit gemessen werden [Sch96, Ude97a, Bea97, Ber99]. Diese Ketten beruhen im Prinzip auf der stufenweisen Erzeugung einer optischen Referenzfrequenz (nahe der zu messenden Frequenz) als ganzzahligem Vielfachen einer Radiofrequenz über viele nichtlineare Frequenzkonversionen. Sie sind auf zufällige Koinzidenzen aller erzeugten Zwischenfrequenzen mit verfügbaren „Verstärker“-Oszillatoren in den entsprechenden Frequenzbereichen angewiesen. Trotz ihrer dadurch bedingten hohen Komplexität sind harmonische Frequenzketten jedoch nur einseitig für die Messung dieser einen Frequenz einsetzbar. Entsprechend fehlte auch für zukünftige optische Atomuhren bislang das Konzept für ein kompaktes, einfach zu handhabendes und über längere Zeiten zuverlässig arbeitendes „Uhrwerk“, welches die optischen Frequenzen in praktisch nutzbare Radiofrequenzen übersetzt.

Mit der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Methode der präzisen Messung optischer Fre-

quenzen mit ultrakurzen Pulsen lässt sich dagegen eine Radiofrequenz mit wesentlich geringerem technischen Aufwand direkt in eine optische Frequenz konvertieren. In nur wenigen nichtlinearen Schritten kann aus einer Radiofrequenz ein viele 10 THz breiter Kamm von Referenzfrequenzen im optischen Bereich erzeugt werden: Mittels der perfekt äquidistanten Moden des von einem modengekoppelten Laser emittierten Pulszuges, deren Abstand durch die Radiofrequenz der periodischen Pulsrepetition gegeben ist, lässt sich das Frequenzintervall zwischen zwei Vielfachen einer Laserfrequenz f wie mit einem geeichten Lineal vermessen und damit f bestimmen. Diese Methode konnte in ihrer Zuverlässigkeit experimentell bestätigt werden und erstmals praktisch zur Messung der $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz in Wasserstoff eingesetzt werden. Damit steht ein einfacher „Synthesizer“ für optische Frequenzen und gleichzeitig das bisher fehlende Uhrwerk für zukünftige optische Atomuhren zur Verfügung.

1.1 Leitfaden durch diese Arbeit

Der Aufbau der Arbeit wird im folgenden erläutert: Den eigentlichen experimentellen Kapiteln 4 - 7 sind zwei kürzere einführende Kapitel vorangestellt:

Kapitel 2 gibt eine Einführung in die Thematik der Arbeit. Nachdem diese Einleitung schon einige Antworten auf die Frage „Warum sind präzise optische Frequenzmessungen wichtig?“ gegeben hat, steht in diesem Kapitel die Frage „Wie kann man Frequenzen präzise messen?“ im Vordergrund. Anhand des kurzen chronologischen Überblicks über die Methoden der Frequenzmessung wird schnell einsichtig, daß diese Frage eher umformuliert werden sollte in „Wie kann man *mit möglichst geringem technischen Aufwand* präzise Frequenzmessungen durchführen?“. Die in den Kapiteln 5 und 6 vorgestellten Experimente, die Reaktion vieler Arbeitsgruppen, die unser Konzept übernehmen oder an ähnlichen Projekten arbeiten und die neuen Entwicklungen in jüngster Vergangenheit, welche weitere Vereinfachungen des Systems versprechen, geben die Antwort zugunsten der Frequenzmessung mit Femtosekundenpulsen. Die weiteren Abschnitte gehen auf die grundsätzliche Idee dieser neuen Methode ein und stellen ein von uns entwickeltes einfaches Modell für den mit dem Femtosekundenlaser erzeugten Frequenzkamm vor.

In den experimentellen Kapiteln, vor allem in Kapitel 4, wird an wesentlichen Stellen von Effekten und Techniken der Physik ultrakurzer Pulse Gebrauch gemacht. Dieses Teilgebiet der Optik ist zwar Wissenschaftlern anderer Fachrichtungen, beispielsweise der Femtochemie, wohlvertraut, lag jedoch bisher weit entfernt von den praktischen Erfordernissen optischer Frequenzmessungen. Aus diesem Grund gibt **Kapitel 3** einen zusammenfassenden Überblick über die Grundlagen der Femtosekunden-Physik, vor allem über Dispersion und Nichtlinearitäten. In den folgenden Kapiteln wird immer wieder auf diese zurückgegriffen.

Kapitel 4 stellt die von uns entwickelten experimentellen Techniken vor, die einen Femtosekundenlaser erst zu einem vielseitig einsetzbaren Instrument der Frequenzmessung machen:

- Eine spezielle Stabilisierung des Laserresonators, mit dem der Modenabstand des Frequenzkamms und unabhängig seine Position im Frequenzraum kontrolliert werden können.
- Methoden zur Erweiterung des vermeßbaren Spektralbereichs durch nichtlineare spektrale Verbreiterung der Pulse in optischen Fasern.
- Techniken zur rauscharmen Detektion von Schwebungssignalen mit den Moden des Frequenzkamms.
- Bestimmung der Modenzahl innerhalb eines Frequenzintervalls mit Hilfe spektraler Filterung der Moden durch einen externen Resonator.

Weitere Abschnitte setzen sich mit von uns verwendeten etablierten Techniken der Frequenzmessung auseinander: Phasenstabilisierungen, optischen Frequenzintervall-Teilern und dem optischen Frequenzkamm-Generator (OFCG).

Der **letzte Abschnitt von Kapitel 4** stellt unsere Experimente vor, durch die der Femtosekundenlaser seine Berechtigung als höchst präzises Meßinstrument optischer Frequenzen erhält: die experimentelle Bestätigung des in Kapitel 2 vorgestellten theoretischen Modells des Frequenzkamms. Durch Vergleich mit etablierten Methoden zur Messung großer Frequenzlücken haben wir die Integrität des Kamms experimentell überprüft. Dabei konnte die gleichmäßige Verteilung der Moden in einem Frequenzintervall von 20.12 THz untersucht und innerhalb der experimentellen Grenzen von 3.0×10^{-17} verifiziert werden. Durch Vergleich mit einem optischen Frequenzkamm-Generator (OFCG) auf einem Frequenzintervall von 4.15 THz konnte auch die Gleichheit der stabilisierten Repetitionsrate des Femtosekundenlasers mit dem Modenabstand innerhalb der Grenzen des Experiments von 6.0×10^{-16} bestätigt werden. Die Ergebnisse wurden in [Ude99b] publiziert.

Sämtliche Frequenzmessungen der experimentellen Kapitel wurden im Team mit Ronald Holzwarth und Thomas Udem durchgeführt. Als Femtosekundenlaser wurde ein Laser Modell Mira 900 (Coherent, Inc.) mit einer Pulsdauer von 73 fs und einer Pulsrepetitionsfrequenz von 75 MHz eingesetzt.

Kapitel 5, 6 und 7 beschäftigen sich mit den von uns durchgeführten Messungen der Frequenzen einiger physikalisch relevanter optischer Übergänge, der Cäsium D_1 Linie, des Wasserstoff $1S$ - $2S$ Übergangs und des 1S_0 - 3P_0 Übergangs an einem einzelnen Indium⁺-Ion. Diese Frequenzmessungen wurden in Zusammenarbeit mit den Experimentatoren der jeweiligen Spektroskopie-Experimente durchgeführt.

Vom Standpunkt der Technik der Frequenzmessung kommt den einzelnen Experimenten unterschiedliche Bedeutung zu: Die Frequenz der Cäsium D_1 Linie und des Indium $^1S_0 - ^3P_0$ Übergangs wurden durch Vergleich mit Referenzfrequenzen im infraroten (Methan-stabilsierter He-Ne-Laser bei $\lambda = 3.39$ bei Cs und In) und optischen Bereich (Iod-stabilsierter frequenzverdoppelter Nd:YAG-Laser bei 532 nm im Indium-Experiment) bestimmt. Die dabei verwendeten Frequenzketten waren harmonische Frequenzketten, mit einem wesentlichen Unterschied gegenüber bisher verwendeten Frequenzketten: Bei den Vergleichen traten große Lücken in der Frequenzkette auf, die erstmalig phasenkohärent überbrückt werden konnten. Bei der Messung der Indium-Übergangsfrequenz war dies eine Lücke von 1.4 THz, die mit einem optischen Frequenzkamm-Generator (OFCG) überbrückt werden konnte, bei der Cs D_1 Linie eine Lücke von 18 THz, deren Überbrückung erst mit der Entwicklung der Frequenzmeß-Techniken mit einem modengekoppelten Femtosekunden-Laser möglich wurde.

Die für die Messung des Wasserstoff $1S-2S$ Intervalls (Vakuum-Ultraviolett) entwickelte Frequenzkette stellt dagegen jedoch eine *konzeptuelle Neuerung* dar, die mit großer Wahrscheinlichkeit in Zukunft das Prinzip der harmonischen Frequenzketten ablösen wird: Bestimmung einer Laserfrequenz durch Messung des Frequenzintervalls zwischen Vielfachen (Harmonischen oder Subharmonischen) dieses Lasers. Die benutzte Frequenzkette ist vereinfacht in Abbildung 1.1 gezeigt. Durch Messung der großen Frequenzlücke von etwa 45 THz zwischen dem 3.5-fachen und 4-fachen einer Laserfrequenz mit Hilfe eines modengekoppelten Lasers wird diese selbst bestimmt, und damit alle Frequenzen des Versuchsaufbaus. Dadurch, daß der Modenabstand des Frequenzkamms des Femtosekundenlasers durch eine Radiofrequenz-Referenz kontrolliert werden kann, läßt sich diese Frequenz phasenkohärent mit den optischen Frequenzen vergleichen: Auf diese Weise konnten wir erstmals einen phasenkohärenten Vergleich von Vakuum-Ultraviolett-Frequenzen und der Frequenz einer Cäsium-Atomuhr durchführen, mit einem gegenüber den bisher verwendeten Frequenzketten wesentlich vereinfachten Aufbau. Gleichzeitig stellt die gemessene Frequenz des $1S-2S$ Intervalls in Wasserstoff jetzt die am genauesten bekannte optische Frequenz dar.

Die Ergebnisse der Frequenzmessung Cäsium D_1 Linie, über die **Kapitel 5** berichtet, stellen einen wichtigen Beitrag für eine experimentelle Neubestimmung der Feinstrukturkonstanten α dar. Die Experimente wurden in [Ude99a] veröffentlicht.

Die Messungen der Wasserstoff $1S-2S$ Übergangsfrequenz in **Kapitel 6** wurden in Zusammenarbeit mit Markus Niering und Martin Weitz (Wasserstoff-Spektroskopie) durchgeführt und wurden bei „Physical Review Letters“ veröffentlicht (im Anhang dieser Arbeit abgedruckt). Bei der zweiten Stufe dieser Messungen wurde eine Cäsium-Fontänenuhr [San99] verwendet. Die Experimente kamen in Zusammenarbeit mit P. Lemonde, M. Abgrall und G. Santarelli aus der Arbeitsgruppe von Prof. A. Clairon und Prof. C. Salomon am Laboratoire Primaire des Temps et Frequences und der École normale supérieure, Paris, zustande, sowie mit P. Pokasov aus der

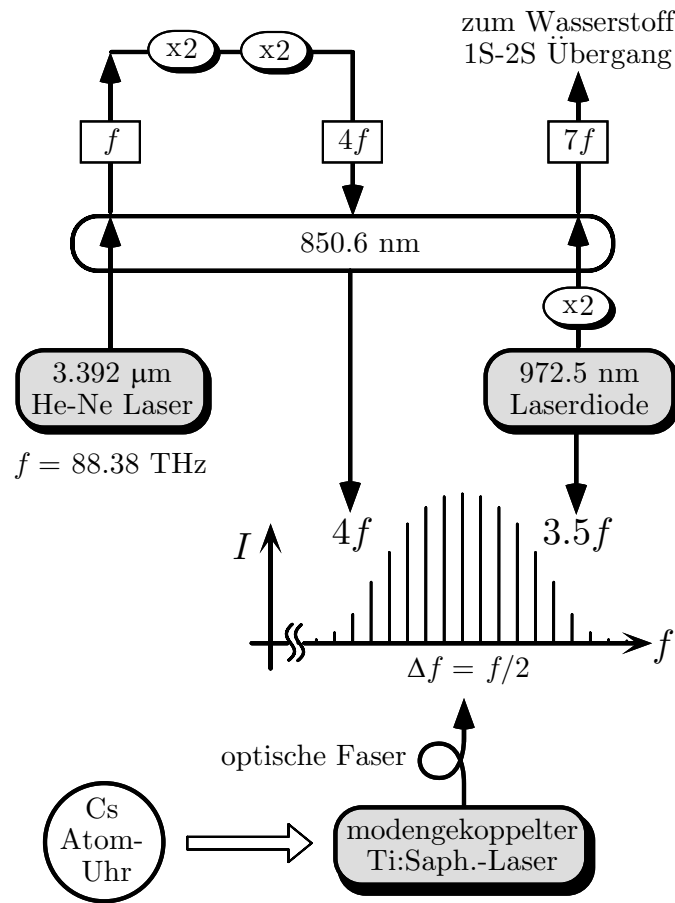


Fig. 1.1: Vereinfachtes Schema der neuen Frequenzkette zur Messung der $1S-2S$ Übergangsfrequenz in Wasserstoff bei 121.6 nm . Der optische Frequenzintervall-Teiler (ovales Symbol) legt das Verhältnis seiner Frequenzen auf $f : 4f : 7f$ fest. Durch Messung der Frequenz eines stabilisierten He-Ne-Lasers in Form eines Intervalls der Größe $f/2$ bei 900 nm sind sämtliche Frequenzen im Versuchsaufbau bestimmt.

Arbeitsgruppe von Prof. S. N. Bagayev vom Institute of Laser Physics, Novosibirsk. Die Ergebnisse dieser Messung sind bei Physical Review Letters zur Veröffentlichung akzeptiert [Nie00a].

Das Experiment zur Bestimmung des $^1S_0 - ^3P_0$ -Übergangs von Indium⁺ wurde an dem Indium-Spektrometer der Arbeitsgruppe von Prof. H. Walther am Max-Planck-Institut für Quantenoptik durchgeführt. Dieses Experiment, über das in **Kapitel 7** zusammenfassend berichtet wird, stellt eine erste Stufe der Frequenzmessungen dar. In einer weiteren, inzwischen durchgeführten Messung wurde die Frequenz des In⁺-Ions mit der Frequenz eines Methan-stabilisierten He-Ne-Lasers [Bag97a] verglichen, wobei eine Frequenzlücke von 36.6 THz mit dem modengekoppelten Laser überbrückt wurde. In einer geplanten dritten Stufe der Frequenzmessungen soll in ähnlicher Weise wie bei der Messung des $1S-2S$ Übergangs in Wasserstoff (Kapi-

tel 6) eine Frequenzkette verwendet werden, die die Frequenz des In^+ Übergangs direkt mit der Radiofrequenz einer Cäsium-Fontänenuhr [San99] vergleicht. Das berichtete Experiment wurde in Zusammenarbeit mit E. Peik, Th. Becker, J. von Zanthier und M. Fries aus der Gruppe von Prof. H. Walther, Garching, sowie A. Nevsky und M. Skvortsov aus der Gruppe von Prof. S. N. Bagayev, Novosibirsk, durchgeführt. Die Ergebnisse sind in [Zan99] veröffentlicht.

Kapitel 2

Optische Frequenzmessung mit ultrakurzen Lichtpulsen

Die genaue Bestimmung von Frequenzen oder Wellenlängen von elektromagnetischen Übergängen in Atomen hat einen wesentlichen Beitrag zu den physikalischen Entdeckungen des zwanzigsten Jahrhunderts geleistet, die das heutige physikalische Weltbild geformt haben. Nach der Erforschung und einem weitgehenden Verständnis der Phänomene, die die Elektronenhülle von Atomen betreffen, können mit der heute durch Laser erreichbaren Präzision der Spektroskopie Effekte beobachtet werden, die weit über rein atomphysikalische Effekte hinausgehen. So kann zum Beispiel durch Spektroskopie von Übergängen am Wasserstoff und Deuterium der Proton-Ladungsradius bzw. der Deuteron-Strukturradius bestimmt werden [Ude97a, Hub98], kernphysikalische Größen, die bisher nur mit großen Teilchenbeschleunigern bestimmt werden konnten. Maßgeblichen Anteil hat dabei die Entwicklung von Meßmethoden, mit denen optische Frequenzen im Bereich von 10^{14} bis 10^{15} Hz direkt gemessen werden können. Mit der in dieser Arbeit beschriebenen Methode der Frequenzmessung mit ultrakurzen Lichtpulsen werden hochpräzise optische Frequenzmessungen wesentlich vereinfacht und dadurch höhere Meßgenauigkeiten als bisher ermöglicht. Damit steht der Weg offen zur Beantwortung fundamentaler physikalischer Fragestellungen, die von aussagekräftigen Tests der QED gebundener Systeme über die genauere Bestimmung und Suche nach möglichen kleinen Variationen der Naturkonstanten bis hin zu Tests der CPT-Invarianz von Wasserstoff und Antiwasserstoff reichen (siehe Ausblick).

Dieses Kapitel führt mit einem Überblick über Methoden optischer Frequenzmessung in die Problemstellungen dieser Arbeit ein und stellt die Rolle der Messungen mit modengekoppelten Lasern in diesem Kontext dar. Ein weiterer Abschnitt erklärt die dafür wesentlichen Eigenschaften des Spektrums eines modengekoppelten Lasers in anschaulicher Weise als Fouriertransformierte des emittierten Pulszuges. In einem letzten Abschnitt wird dieses einfachen

Modell konkretisiert, wobei insbesondere auf die Rolle der Phase des Lichtfeldes relativ zur Pulseinhüllenden-Funktion und ihre Relevanz für Messungen absoluter optischer Frequenzen eingegangen wird.

2.1 Methoden optischer Frequenzmessung

Um optische Frequenzen mit höchster Genauigkeit messen zu können, müssen diese in möglichst direkter Weise mit einer Frequenzquelle verglichen werden, die die 1964 erfolgte Definition der Zeiteinheit Sekunde als 9 192 631 770 Schwingungen der Hyperfein-Aufspaltung des Grundzustands von ^{133}Cs am exaktesten realisiert: mit einer Cäsium-Atomuhr. Die besten Atomuhren erzeugen diese Mikrowellen-Frequenz heute mit einer relativen Unsicherheit von 10^{-15} [San99]. Da die interessierenden „optischen“ Frequenzen im Bereich von einigen 100 THz (Infrarot) bis etwa 2000 THz (Vakuum-Ultraviolett) liegen, steht man hier vor dem Problem, mit möglichst geringem Präzisionsverlust Frequenzen ineinander zu konvertieren, die sich um etwa fünf Größenordnungen unterscheiden.

Die einzigen Instrumente, die diese Aufgabe mit einer höheren Genauigkeit erfüllen können, als durch interferometrische Wellenlängenmessung erreichbar ist (üblicherweise bis zu etwa 10^{-8} , vergleiche z. B. [Avi86]), waren bisher sogenannte harmonische Frequenzketten [Sch96, Sch99, Ber99], wie die beispielsweise auch bislang in Garching zu Messungen der $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz in Wasserstoff verwendete Frequenzkette [Ude97a]. Diese Ketten synthetisieren eine optische Referenzfrequenz als geschickt gewählte Kombination aus ganzzahligen Vielfachen von präzise meßbaren Radiofrequenzen und nutzen dafür nichtlineare Frequenzkonversionen wie Frequenz-Vervielfachung und Summenbildungen aus, um stufenweise den Faktor von etwa 100 000 zu überwinden. Aufgrund der zum Teil sehr niedrigen Effizienz der verwendeten nichtlinearen Prozesse ist dies nur in etwa 10 bis 20 kleinen Schritten möglich, wobei immer wieder Transfersoszillatoren im jeweiligen Frequenzbereich das Signal „verstärken“ müssen. Dabei ist man bei jedem dieser Schritte auf eine zufällige Koinzidenz des nichtlinearen Produkts mit der Frequenz eines verfügbaren Oszillators angewiesen. Um auf dem Weg vom Radiofrequenz- zum optischen Bereich nicht an Genauigkeit zu verlieren, muß die Phasenbeziehung zwischen zu verstärkenden Signalen und Transfersoszillatoren jederzeit nachvollziehbar sein: die Frequenzkette muß phasenkohärent sein. Dies wird durch Phasenstabilisierung (siehe Abschnitt 4.5) oder elektronisches Zählen von niederfrequenten Schwebungssignalen zwischen zwei optischen Frequenzen erreicht.

Harmonische Frequenzketten sind auf die Messung einer einzigen Frequenz ausgerichtet und daher in ihrer Einsetzbarkeit relativ unflexibel: Falls die ausgenutzten Koinzidenzen nicht perfekt sind, d. h. das Schwebungssignal zwischen der zu messenden Frequenz und der von der Ket-

te erzeugten Harmonischen nicht im Bereich direkt meßbarer Frequenzen (bis etwa 100 GHz) ist, dann steht man vor größeren experimentellen Schwierigkeiten. So stellte bei früheren Messungen des Wasserstoff $1S$ - $2S$ Übergangs [Ude97a] eine Frequenzlücke von 8 THz jahrelang die hauptsächliche experimentelle Herausforderung dar. Ein weiterer gravierender Nachteil dieser Frequenzketten ist ihre extreme Komplexität: Da bei der Multiplikation von Radiofrequenzen in den optischen Bereich sämtliche dazwischenliegenden Frequenzbereiche durchschritten werden, die von völlig unterschiedlichen Technologien Gebrauch machen, bestehen diese Ketten aus einer Vielzahl verschiedenster Oszillatoren, sind dadurch schwierig handhabbar und erfordern hohen personellen Aufwand.

Im Jahr 1989 wurde von T. W. Hänsch und D. McIntyre eine Lösung für das Problem der präzisen Messung großer Frequenzintervalle im optischen Bereich und gleichzeitig eine Alternative zum Konzept der harmonischen Frequenzketten vorgeschlagen ([Hän89], siehe auch [Tel90]): Eine beliebig große optische Frequenzlücke kann mit kaskadierten optischen Frequenzintervall-Teilern (Abschnitt 4.7) so lange wiederholt halbiert werden, bis das verbleibende Intervall einer Messung als Schwebungsfrequenz zugänglich wird. Die Frequenzmessung einer Laserfrequenz f kann dann durch Messung des Intervalls zwischen zwei Harmonischen des Lasers, z. B. durch Messung des Intervalls $\Delta f = f$ zwischen f und $2f$ auf die Messung einer großen optischen Frequenzlücke zurückgeführt werden. Diese Methode hat den entscheidenden Vorteil, daß sie im Gegensatz zu harmonischen Frequenzketten nur die Technologien einer Oktave des Frequenzspektrums benötigt, so daß diese Frequenzkette allein mit Halbleiter- und Festkörperlasern aufgebaut werden kann. Die Gangbarkeit dieses Weges wurde 1997 im Rahmen der Promotionsarbeit von Thomas Udem gezeigt [Ude97a, Ude97b], als mit einer 5-stufigen Kaskade aus Frequenzteilern eine Frequenzlücke von effektiv 2 THz überbrückt werden konnte. Eine rein aus Frequenzteilern aufgebaute Frequenzkette zur Überbrückung einer kompletten Oktave des optischen Spektrums wäre jedoch immer noch verhältnismäßig komplex gewesen: Zur Messung etwa des Intervalls von annähernd 300 THz zwischen 1064 nm und 532 nm wären mindestens 12 Frequenzteiler nötig gewesen. Um den Aufwand zu verringern, mußten Methoden gefunden werden, größere Frequenzlücken *in einem Schritt* zu überbrücken, als dies allein durch Messung einer Schwebungsfrequenz möglich war.

Mit der Verfügbarkeit von sogenannten optischen Frequenzkamm-Generatoren (engl. Optical Frequency Comb Generator, OFCG, siehe Abschnitt 4.8) ab 1995, mit denen in sehr kompaktem Aufbau in einem einzigen Schritt Intervalle von mehreren Terahertz überbrückt werden konnten, war die Verwirklichung der Idee von 1989 in greifbare Nähe gerückt. Diese höchst effizienten elektro-optischen Modulatoren können durch optische Überhöhung des Trägers und der Seitenbänder einen äquidistanten Kamm von mehreren hundert Seitenbändern erzeugen, deren Abstand (einige GHz) durch die verwendete Modulationsfrequenz bestimmt wird [Kou95, Bro94, Kou94]. Die Größe eines Intervalls zwischen zwei Laserfrequenzen kann

so aus den gemessenen Schwebungsfrequenzen zu den jeweils nächstgelegenen Seitenbändern sowie der Modulationsfrequenz, multipliziert mit der Anzahl der OFCG-Seitenbänder innerhalb des Intervalls, bestimmt werden, mit derselben Genauigkeit wie die verwendete Radiofrequenz-Referenz. Dieses „Lineal mit geeichtem Abstand der Skalenteile“ konnte von uns bei präzisen Frequenzmessungen zur Überbrückung von optischen Intervallen bis 2 THz eingesetzt werden [Hub98, Ude98, Ude99b]. In unserem Labor war dazu von Motonobu Kourogi aus der Gruppe von Prof. M. Ohtsu vom Tokyo Institute of Technology, Japan, freundlicherweise ein OFCG mit Wellenlängen um 850 nm aufgebaut worden. Dabei konnte auch durch Vergleich mit einer Kaskade aus Frequenzintervall-Teilern die korrekte Funktionsweise beider Methoden überprüft und innerhalb der experimentellen Auflösung bestätigt werden [Ude98]. Durch eine Verfeinerung des Konzepts [Kou96] und Nutzung der Verbreiterung des Spektrums durch Selbst-Phasenmodulation in einer dispersions-kompensierten optischen Faser sind inzwischen mit OFCGs auch Intervalle bis zu etwa 12 THz der phasenkohärenten Überbrückung zugänglich geworden [Ima99].

Wesentlich größere Intervalle können jedoch mit einem Frequenzkamm überbrückt werden, der als Spektrum eines Pulszuges von einem modengekoppelten Femtosekundenlaser emittiert wird. Analog zum OFCG können große Frequenzdifferenzen durch Messung von Schwebungsfrequenzen und aus der Anzahl der Moden im Intervall und dem Modenabstand bestimmt werden. Die perfekt äquidistante Modenstruktur des emittierten Spektrums kommt dabei durch die periodische Repetition der Pulse zustande; die spektrale Breite des erzeugten Frequenzkamms ist durch die reziproke Beziehung zur Dauer der einzelnen Pulse bestimmt. Effektive spektrale Verbreiterung der Pulse durch Selbst-Phasenmodulation in einer optischen Faser (Abschnitt 4.3) kann jedoch zusätzlich die Reichweite des Frequenzkamms wesentlich erhöhen. Im Rahmen dieser Arbeit konnte damit das Konzept von Hänsch und McIntyre zum ersten Mal experimentell verwirklicht werden, Absolutfrequenz-Messungen auf die Messung großer Frequenzintervalle zurückzuführen (Kapitel 6). Durch phasenkohärente Überbrückung eines Frequenz-Intervalls von 45.2 THz zwischen zwei Harmonischen eines He-Ne-Lasers konnte die Frequenz des Wasserstoff $1S$ - $2S$ Übergangs direkt mit der Frequenz einer Cäsium-Uhr verglichen werden (Abbildung 1.1) und damit die bei früheren Messungen verwendete harmonische Frequenzkette wesentlich vereinfacht werden. Die bisher verwendete sekundäre Frequenz-Referenz, ein Methan-stabilsierter Helium-Neon-Laser [Ude97a], der zu seiner Kalibrierung den Einsatz der kompletten Frequenzkette der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt Braunschweig (PTB) [Sch96] im Infraroten notwendig machte, ist nun durch eine lokale Cäsium-Atomuhr ersetzt worden. Zum ersten Mal konnte dabei eine direkte Konversion von Radiofrequenzen in Vakuum-Ultraviolett-Frequenzen demonstriert werden (Abschnitt 6) und gleichzeitig die Meßgenauigkeit um mehr als eine Größenordnung verbessert werden.

Da bei den hier vorgestellten Experimenten ein kommerzieller Femtosekundenlaser mit einer

moderaten Pulsdauer von etwa 70 fs verwendet wurde, liegt schon in der Verwendung kürzerer Pulse (Pulse bis etwa 5 fs Dauer wurden schon demonstriert [Mor99]) ein enormes Potential an Verbreiterung des Spektrums und damit Vereinfachung des Gesamtsystems. In den Experimenten dieser Arbeit wurde das Prinzip gezeigt, Absolutfrequenzmessungen auf die präzise Bestimmung von Intervallen zwischen Laserharmonischen zurückzuführen, die mit den longitudinalen Moden eines Femtosekundenlasers überbrückt werden können. Die weitere Entwicklung wird darauf ausgerichtet sein, die Realisierung dieses Prinzips weiter zu vereinfachen, um kompaktere, einfach handhabbare „optische Synthesizer“ für präzise Frequenzkonversion zur Verfügung zu stellen. Außer unserer Arbeitsgruppe verfolgen diesen Weg der Frequenzmessung auch einige weitere Arbeitsgruppen (Prof. J. L. Hall bei JILA in Boulder, Colorado [Did00]; Prof. U. Keller, ETH Zürich, in Zusammenarbeit mit H. Telle, PTB Braunschweig [Tel99]), bei anderen Arbeitsgruppen ist der Einsatz von Femtosekundenlasern zur Frequenzmessung geplant (z. B. an den nationalen Standard-Labors NRC, Kanada, NPL, Großbritannien, und NRLM, Japan).

Einen Durchbruch in der Entwicklung zu breitbandigen Spektren hat in allerjüngster Zeit jedoch die Verwendung von sogenannten „Photonischen Kristall-Fasern“ [Kni96] gebracht. Mit diesen konnte schon die spektrale Verbreiterung von Pulsen aus einem kommerziellen Femtosekundenlaser auf einen Wellenlängenbereich von 400 nm bis 1600 nm beobachtet werden [Wad99, Ran99]. Unter der Voraussetzung, daß die spektral verbreiternden nichtlinearen Prozesse die Kohärenz aufeinanderfolgender Pulse erhalten, ist dadurch die Konstruktion eines äußerst kompakten optischen Frequenz-Synthesizers möglich. Durch phasenkohärente Überbrückung einer vollen optischen Oktave zwischen der fundamentalen und der zweiten harmonischen Frequenz eines Lasers kann dann in einem einzigen Schritt die Verbindung zwischen dem optischen Bereich und dem Radiofrequenzbereich hergestellt werden, die eine präzise Messung jeder optischen Frequenz dieser Oktave in einfacher Weise ermöglicht.

2.2 Frequenzmessung mit dem modengekoppelten Laser

1978 wurde zum ersten Mal von J. N. Eckstein, A. I. Ferguson und T. W. Hänsch ein aktiv modengekoppelter Pikosekundenlaser zur Vermessung der $4d$ Feinstrukturaufspaltung von Natrium verwendet [Eck78]. Dabei konnte mit Pulsen einer Länge von 100-500 ps ein Intervall von 1.8 GHz überbrückt werden. Die Messungen, bei denen der Pulslaser direkt zur Zwei-Photonen-Spektroskopie verwendet wurde, waren noch nicht phasenkohärent, die Meßgenauigkeit war jedoch nicht dadurch, sondern durch spektroskopische Unsicherheiten begrenzt. Ähnliche Überlegungen zu „Ramsey-ähnlicher“ Spektroskopie wurden auch von V. Chebotaev angestellt [Che90]. Jedoch ist es der rasanten Entwicklung modengekoppelter Femtosekundenlaser

zu immer kürzeren Pulsdauern zu verdanken, daß heute Intervalle mit einer Größe vieler Terahertz höchst präzise vermessen werden können.

Ein einfaches Modell soll die Methode der Frequenzmessung mit ultrakurzen Pulsen aus den verschiedenen Perspektiven der zeitlichen und spektralen Darstellung verständlich machen. Dabei ist zum prinzipiellen Verständnis der wesentlichen Aspekte die detaillierte Kenntnis der Funktionsweise des Lasers nicht notwendig. Lediglich folgende zwei Eigenschaften der Pulse sind von Bedeutung:

- Periodische Wiederholung der Pulse in dem Sinne, daß die vom Laser emittierte Lichtintensität periodisch moduliert ist.
- Kohärenz aufeinanderfolgende Pulse, d. h. es besteht eine feste Phasenbeziehung des Lichtfeldes von einem Puls zum nächsten.

Beide Aspekte sind bei einem Puls laser realisiert, der seine Pulse durch „longitudinale Modenkopplung“ erzeugt (siehe Abschnitt 4.1). Dabei werden nicht einzelne unabhängige Pulse erzeugt, sondern durch geeignete Mechanismen wird erreicht, daß ein einzelner Lichtpuls kontinuierlich, im quasi-cw-Betrieb, im Laserresonator umläuft. Bei jeder Reflexion am Auskoppelspiegel wird dabei ein Teil der Pulsintensität emittiert. Als „Kopien“ desselben umlaufenden „Originalpulses“ besitzen die aufeinanderfolgend emittierten Pulse in natürlicher Weise ein hohes Maß an Phasenkohärenz, der Laserresonator stellt dabei das Langzeit-Phasengedächtnis zur Verfügung.

Das Spektrum eines einzelnen Pulses besteht einfach aus einem breiten Kontinuum von Frequenzen, durch die reziproke Beziehung aus Pulsdauer Δt und spektraler Bandbreite $\Delta \nu \propto 1/\Delta t$ festgelegt. Durch die periodische kohärente Wiederholung der Pulse wird dem Spektrum eine Modenstruktur aufgeprägt, analog wie sich bei einem räumlichen Interferenzmuster beim Übergang von Beugung am einfachen Spalt über den Doppelspalt zum Beugungsgitter zunehmend scharfe Intensitätsmaxima ausprägen.

Vereinfacht gesprochen kann man sich den emittierten Pulszug durch extreme Amplitudenmodulation einer optischen Trägerfrequenz erzeugt vorstellen. Dies entspricht in spektraler Darstellung einer großen Anzahl von Seitenbändern zentriert um die Trägerfrequenz, deren Abstand durch die Modulationsfrequenz, d.h. exakt durch die Pulsrepetitionsfrequenz gegeben ist. Bei einem Femtosekundenlaser entsteht also ein breiter Frequenzkamm aus Moden gleichen Abstands. In unserem Fall, bei einem mit Kerr-Linse modengekoppelten Laser (Abschnitt 4.1) mit einer Pulslänge von 73 fs, entstand ein Kamm von bis zu 20 THz nutzbarer Bandbreite, bestehend aus mehreren 100 000 Moden mit einem Abstand von 76 MHz. Die Linienbreite der einzelnen Moden selbst wird dabei durch die Stabilität der Pulsrepetitionsrate und der Trägerfrequenz bestimmt, also durch die Stabilität des Laserresonators.

Möchte man das Spektrum als aktive Moden des Laser-Resonators interpretieren, so ergibt sich scheinbar ein Problem: Naiverweise würde man für einen Laserresonator aufgrund seiner dispersiven optischen Elemente erwarten, daß die Resonatormoden *nicht* so präzise äquidistant über den aktiven Spektralbereich des Lasers verteilt sind, daß dadurch Frequenzmessungen höchster Genauigkeit ermöglicht werden. Allerdings würde in diesem Fall ein im Resonator umlaufender kurzer Puls mit der Zeit auseinanderlaufen, da die beteiligten Moden außer Phase geraten. Der Modenkopplungs-Mechanismus verhindert genau dies, indem er die Pulsform zeitlich stabilisiert. Im Frequenzbild kann man dies auch so verstehen, daß die einzelnen Lasermoden durch „injection-locking“ von den Modulations-Seitenbändern der benachbarten Moden gezwungen werden, mit deren Frequenz zu oszillieren. Das funktioniert jedoch nur, solange die Dispersion im Resonator so kompensiert ist, daß dessen Moden über einen weiten Frequenzbereich möglichst konstanten Abstand haben und von den Seitenbändern nicht zu weit gezogen werden müssen. In den durch Kerr-Linse modengekoppelten Lasern wird dies dadurch erreicht, daß die „normale“ positive Gruppengeschwindigkeitsdispersion $\partial^2 k / \partial \omega^2$ durch Elemente mit negativer Gruppengeschwindigkeitsdispersion kompensiert wird.

Üblicherweise wird der Modenabstand von passiven Resonatoren als „freier Spektralbereich“ (FSR) bezeichnet und aus der Phasengeschwindigkeit zu $\text{FSR} = c/n2L$ berechnet, wobei n den Brechungsindex bezeichnet. Dispersion im Resonator bleibt jedoch in diesem Ausdruck unberücksichtigt, daher ist er für die Beschreibung des Modenkamms in Anwendungen präziser Frequenzmessungen nicht adäquat. In einem passiven linearen Resonator der Länge L ist der Modenabstand durch die Forderung festgelegt, daß $2Lk(\omega)$ ein Vielfaches von 2π ist. Die Dispersion ist dabei in der Frequenzabhängigkeit des Wellenvektors $k(\omega)$ enthalten, der um eine Zentralfrequenz ω_0 entwickelt werden kann:

$$k(\omega) = k(\omega_0) + \left. \frac{\partial k}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (2.1)$$

Um einen konstanten Modenabstand zu erreichen, müssen alle Terme außer den ersten beiden verschwinden. Der dritte Term jedoch ist proportional zur Gruppengeschwindigkeitsdispersion, die ja in durch Kerr-Linse modengekoppelten Lasern kompensiert ist. Die restlichen Terme müssen im Pulsbetrieb durch Ziehen der aktiven Lasermoden beim „injection-locking“ ausgeglichen werden. Diese Terme sind ein die Bandbreite des Lasers limitierender Faktor, und die Kunst der Erzeugung immer kürzerer Pulse besteht darin, die Elemente im Laserresonator so zu gestalten, daß auch die Änderung der Gruppengeschwindigkeitsdispersion und höhere Ordnungen der Dispersion über einen weiten Frequenzbereich kompensiert sind [Mor99]. Den Modenabstand kann man nun aus dem zweiten Term mit Hilfe der Gruppengeschwindigkeit $v_g = \partial \omega_0 / \partial k$ berechnen zu $v_g / 2L$. Das ist genau die reziproke Umlaufzeit für einen Puls im linearen Resonator, bzw. die Pulsrepetitionsfrequenz. Im Gegensatz zum Begriff des freien Spektralbereichs stellt diese Pulsrepetitionsrate $f_r = v_g / 2L$ eine leicht experimentell zugängli-

che Größe dar, die den Modenabstand festlegt, und soll statt dessen in der weiteren Diskussion verwendet werden.

Auch im Zeitbereich läßt sich das Prinzip, mit dem große Frequenzlücken durch einen modengekoppelten Laser überbrückt werden können, gut illustrieren: Läßt man den Pulszug des Lasers zusammen mit dem Licht eines cw-Lasers (engl. constant wave laser: Dauerstrich-Laser) auf einen Photodetektor fallen, so wird die Schwebungsfrequenz zwischen dem Träger und dem cw-Laser wie mit einem Stroboskop betrachtet. Die Schwebungsfrequenz wird dabei mit der Pulsrepetitionsfrequenz f_r jeweils momentan „beleuchtet“, so daß nur ihr Anteil modulo f_r sichtbar wird. Zwei weit entfernte cw-Laserfrequenzen lassen sich auf diese Weise modulo f_r vergleichen.

2.3 Der Frequenzkamm

Um das Spektrum des Pulszuges quantitativ zu beschreiben, und dabei gleich mögliche „chirps“, lineare Frequenzzu- bzw. abnahmen des Trägers innerhalb der Pulse (siehe Abschnitt 3.1) zu berücksichtigen, beschreiben wir den elektrischen Anteil des Lichtfeldes am Auskoppelspiegel des Lasers durch

$$E(t) = A(t) e^{-2\pi i f_c t} + c.c., \quad (2.2)$$

wobei f_c die optische Trägerfrequenz bezeichnet. Die Einhüllenden-Funktion $A(t)$ ist eine mit der Pulswiederholzeit periodische Funktion, die komplex sein kann, um sowohl durch ihren Betrag periodische Amplitudenmodulation als auch durch ihren Phasenanteil periodische Phasenmodulation inklusive „chirps“ zu beschreiben. Ist diese Funktion $A(t)$ streng periodisch, dann kann sie durch eine Fourier-Reihe in der Pulsrepetitionsfrequenz f_r ausgedrückt werden: $A(t) = \sum_q A_q e^{-2\pi i q f_r t}$. Das elektrische Feld läßt sich damit schreiben als:

$$E(t) = \sum_{q=-\infty}^{+\infty} A_q e^{-2\pi i (f_c + q f_r) t} + c.c.. \quad (2.3)$$

Das Spektrum von Gleichung 2.3 stellt einen Kamm von Laserfrequenzen dar, die exakt den Abstand f_r haben. Die Koeffizienten A_q , welche die spektralen Intensitäten und die relativen Phasenbeziehungen der Moden zueinander beinhalten, sind dabei nicht zeitabhängig. Ein amplitudenmoduliertes Signal zum Beispiel, mit rein reellem $A(t)$, d.h. $A_{-q} = A_q^*$, würde ein symmetrisches Spektrum mit der Zentralfrequenz f_c erzeugen, wie in Abbildung 2.1 dargestellt. Bei zusätzlicher periodischer Phasenmodulation muß nun das Spektrum nicht mehr symmetrisch und um f_c zentriert sein; die „Trägerfrequenz“ ist nicht mehr eindeutig definierbar.

Dies ist der Normalfall, da die Pulse bei ihrer Erzeugung bzw. beim Durchgang durch dispersive Medien durch Gruppengeschwindigkeitsdispersion und Kerr-Effekt Änderungen der Momentanfrequenz über die Pulslänge hinweg erfahren. Die gleichmäßige Verteilung der Moden im Frequenzraum mit präzisiertem Abstand f_r folgt dabei allein aus der Periodizität der Pulsenhüllendenfunktion $A(t)$. Diese Eigenschaft haben wir experimentell überprüft und mit einer Unsicherheit von wenigen mHz für ein Frequenzintervall von 20 THz bestätigen können (siehe Abschnitt 4.9).

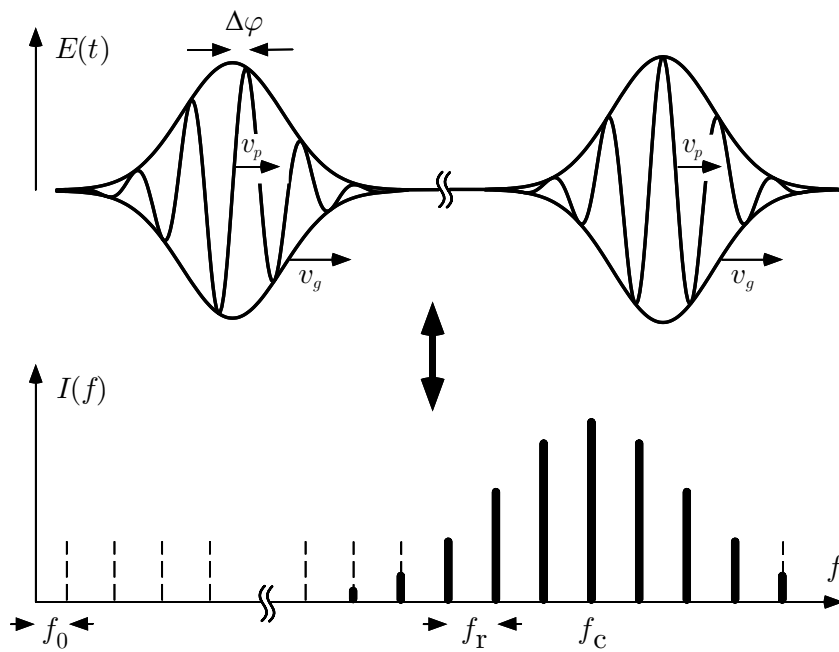


Fig. 2.1: Zwei aufeinanderfolgende Pulse des von einem modengekoppelten Laser emittierten Pulszugs und zugehöriges Spektrum. Innerhalb des Resonators bewegt sich die Einhüllende mit der Gruppengeschwindigkeit v_g , die sich im allgemeinen von der Phasengeschwindigkeit v_p des Trägers unterscheidet. Die Trägerphase ändert sich von Puls zu Puls um den Betrag $\Delta\varphi$. Daher sind die Moden selbst nicht ganzzahlige Vielfache der Pulsrepetitionsrate f_r , sondern um die Phasenschlupffrequenz $f_0 = (\Delta\varphi/2\pi)f_r$ von diesen verschoben.

Im allgemeinen ist die Trägerfrequenz f_c und damit die Frequenz einer beliebigen Mode f_n kein ganzzahliges Vielfaches der Pulsrepetitionsrate f_r . Der Grund dafür wird aus der Erzeugung der Pulse einsichtig, wenn man erst einmal wieder reine Amplitudenmodulation annimmt: Die Einhüllende des Pulses propagiert mit ihrer Gruppengeschwindigkeit v_g im Laserresonator, während die Phase des Trägers mit der Phasengeschwindigkeit v_p läuft. Daher wird sich die Trägerphase in Bezug auf die Einhüllende während jedem Umlauf um einen bestimmten Betrag $\Delta\varphi$ verschieben, wie in Abbildung 2.1 gezeigt. Die Phasenverschiebung, abgeschätzt aus der

Differenz von v_g und v_p , beträgt dabei typischerweise mehrere tausend Mal 2π pro Umlauf, wir können den interessierenden Anteil mit $0 \leq \Delta\varphi \leq 2\pi$ modulo 2π festlegen. Im allgemeinen ist daher das elektrische Feld nicht periodisch mit der Pulswiederholzeit $T = f_r^{-1}$ und kann nicht durch eine Fourierreihe beschrieben werden. Der gesamte Frequenzkamm ist somit um eine Frequenz f_0 , die „Phasenschlupffrequenz“, von den Vielfachen der Pulsrepetitionsrate verschoben:

$$f_0 = (\Delta\varphi/2\pi)T^{-1} = (\Delta\varphi/2\pi)f_r. \quad (2.4)$$

Durch unsere Wahl von $0 \leq \Delta\varphi \leq 2\pi$ ist f_0 kleiner als f_r und zusammen mit Gleichung 2.3 erhält man für die Frequenz der n -ten Resonatormode

$$f_n = nf_r + f_0 = (n + \Delta\varphi/2\pi)f_r. \quad (2.5)$$

wobei wir für die Trägerfrequenz $f_c = n_c f_r + f_0$ setzen (n_c ist dabei eine große ganze Zahl).

In einem realen Pulszug, wo die Trägerfrequenz über einen Puls hinweg nicht konstant bleiben muß, muß diese Phasenmodulation durch $A(t) = |A(t)|e^{-i\alpha(t)}$ in Gleichung 2.2 berücksichtigt werden. Die Phasenänderung $\alpha(t)$ ist für jeden Puls gleich, d.h. $\alpha(t) = \alpha(t - T)$ ist periodisch, was durch die perfekte Äquidistanz der Moden experimentell bestätigt ist. Daher akkumuliert der Puls, unabhängig von der tatsächlichen Form von $\alpha(t)$ während einer Umlaufzeit T einen Phasenfaktor $e^{-2\pi i f_c T}$, der gleich $e^{-2\pi i (n_c + f_0 T)} = e^{-i\Delta\varphi}$ ist. Auch in diesem allgemeineren Fall ist also die Beziehung $f_0 = (\Delta\varphi/2\pi)f_r$ gültig, ebenso wie Gleichung 2.5, obwohl $\Delta\varphi$ nun nicht mehr die unmittelbar einleuchtende Interpretation wie in Abb. 2.1 hat. Wie in Abschnitt 4.2 beschrieben, können wir die beiden Parameter f_r und f_0 des Frequenzkamms unabhängig voneinander beeinflussen und regeln.

Wie die Pulsrepetitionsrate f_r , so liegt auch die Phasenschlupffrequenz f_0 im Radiofrequenzbereich. Gleichung 2.5 würde es daher erlauben, eine optische Absolutfrequenz direkt zu messen. Während f_r einfach mit einem Photodetektor meßbar ist, könnte man f_0 im Prinzip mit einer Kreuzkorrelationsmessung aufeinanderfolgender Pulse messen [Xu96], jedoch nicht mit der für präzise Frequenzmessungen notwendigen Genauigkeit. Wie aus Abbildung 2.1 ersichtlich, ist die innerhalb eines Pulses maximal erreichte elektrische Feldstärke und damit auch die maximale (momentane) Intensität von der Phase φ des Trägers bezüglich der Einhüllenden abhängig, wenn nur die Pulslänge ausreichend kurz ist. Bei stark nichtlinearen Prozessen wie der Erzeugung hoher harmonischer Frequenzen [Lhu93] oder ATI-Experimenten (engl. above threshold ionization) [Pau96], bei denen das Energiespektrum durch Multiphoton-Ionisation erzeugter Photoelektronen untersucht wird, sollte diese Phase daher eine Rolle spielen. Allerdings scheint sich die Detektion eines Signals schwierig zu gestalten, das nur Nichtlinearitäten gerader Ordnung im elektrischen Feld ausnutzt, wie dies bei der Detektion von Lichtintensitäten ($I(t) \propto |E(t)|^2$) von hohen Harmonischen der Fall ist. Eine kurze Rechnung [Rei99]

zeigt, daß dann selbst bei kurzen Pulsen ein extrem kleines, mit der Frequenz $2f_0$ modulierte Signal in Gegenwart eines großen konstanten Hintergrund-Signals detektiert werden muß. Intensitätsfluktuationen des benutzten Lasers könnten die Detektion einer kleinen Modulation der Intensität hoher Harmonischer zusätzlich erschweren. Effekte, die sensitiv auf die Richtung des elektrischen Feldes sind, wie etwa der Tunnel-Effekt, der bei ATI-Experimenten zur Ionisation der Atome im starken elektrischen Feld des Lasers führt, erlauben eine Detektion bei ungeraden Ordnungen der Nichtlinearität mit höherem Kontrast eines nun mit f_0 modulierten Signals. Ein kürzlich vorgeschlagenes Experiment, das die Winkelverteilung von durch ATI erzeugten Photoelektronen messen soll [Die00], könnte sich diesen Effekt zunutze machen und läßt eine direkte Messung der Phase des Lichtfeldes relativ zur Einhüllenden realistisch erscheinen.

Eine andere Methode läßt die Messung optischer Absolutfrequenzen und gleichbedeutend damit auch der Phasenschlupffrequenz f_0 zu und hat sich in der Praxis als einfach und erfolgreich erwiesen: die schon in Abschnitt 2.1 kurz vorgestellte Messung des Frequenzintervalls zwischen zwei Harmonischen eines Lasers. In der einfachsten Form mißt man dabei die Frequenzlücke zwischen einer Laserfrequenz f und ihrer zweiten Harmonischen $2f$, deren Größe exakt f ist, mit dem von einem Femtosekundenlaser emittierten Modenkamm (Abbildung 8.1). Der Modenkamm muß in diesem Fall das Intervall zwischen f und $2f$, also eine volle Oktave, überdecken können. Alternativ kann man jedoch eine beliebige Differenz zwischen verschiedenen Harmonischen und Subharmonischen eines Lasers messen und dabei auftretende Frequenzlücken mit Hilfe von optischen Frequenz-Intervallteilern (siehe Kapitel 4.7) reduzieren, wie dies z.B. bei der Messung der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in Wasserstoff in Kapitel 6 beschrieben ist.

Die Phasenschlupffrequenz kann man zum Beispiel bestimmen, indem man einen cw-Laser auf eine Mode mit der Frequenz $f_1 = f_0 + n_1 f_r$ auf der niederfrequenten Seite des Kamms stabilisiert und das Schwebungssignal zwischen der zweiten Harmonischen des Lasers $2f_1$ und der entsprechenden Mode des Kamms auf der hochfrequenten Seite, $f_2 = f_0 + n_2 f_r$ mit $n_2 = 2n_1$, mißt. Die Schwebungsfrequenz $2f_1 - f_2 = f_0$ liefert exakt die Phasenschlupffrequenz.

Eleganter noch läßt sich f_0 messen, wenn statt eines auf den Kamm stabilisierten cw-Lasers direkt Moden auf der niederfrequenten Seite des Kamms frequenzverdoppelt werden. Mit einem entsprechenden nichtlinearen Kristall können so die Summenfrequenzen aller Modenpaare innerhalb eines (durch die Phasenanpassungsbedingung des verwendeten $\chi^{(2)}$ -Prozesses festgelegten) Kammausschnittes einiger Nanometer Breite um eine Frequenz $f_1 = f_0 + n_1 f_r$ erzeugt werden. Auf diese Weise entsteht ein um $2f_1$ zentrierter Frequenzkamm, ebenfalls mit einem Modenabstand von f_r (Modenfrequenzen: $f = 2f_0 + m f_r$ mit ganzzahligem $m \approx 2n_1$), der mit dem ursprünglichen Kamm (Modenfrequenzen: $f = f_0 + n f_r$, n ganzzahlig) zur Schwebung gebracht werden kann. Als niederfrequente Schwebungsfrequenz tritt dann die Phasenschlupffrequenz f_0 auf, zu deren Signal alle Paare zwischen benachbarten Moden aus je einem der

Kämme beitragen ($f_0 = (2f_0 + mf_r) - (f_0 + nf_r)$, wenn $m = n$). Damit sollten sich Absolutfrequenzmessungen von optischen Frequenzen durchführen lassen, *ohne* einen zusätzlichen cw-Laser zu benötigen. (*Anmerkung nach Beendigung der Dissertation:* Durch die rasante Entwicklung und Vereinfachung der Techniken der Frequenzmessung mit Femtosekundenpulsen, die durch Experimente dieser Arbeit inspiriert wurde, konnten diese hier beschriebene Methode inzwischen in drei Arbeitsgruppen erfolgreich verwirklicht werden: in der Arbeitsgruppe von Dr. S. Cundiff, JILA, Boulder, Colorado [Jon00], von R. Holzwarth aus der Arbeitsgruppe von Prof. T. W. Hänsch, MPQ Garching, und in der Arbeitsgruppe von Prof. F. Krausz, TU Wien.)

Jede andere Absolutfrequenzmessung wie die Absolutfrequenzmessung des $1S$ - $2S$ Übergangs in Wasserstoff ist ebenfalls gleichzeitig eine Messung der Phasenschlupffrequenz; aus den Meßdaten läßt diese sich im Prinzip direkt berechnen.

Über die Bestimmung und Stabilisierung von f_0 (d. h. der *Änderung* $\Delta\varphi$ der Phasenlage des elektrischen Feldes relativ zur Pulseinhüllenden) zum Zweck optischer Absolutfrequenzmessungen hinaus ist ganz besonders die Detektion und Kontrolle der absoluten Phasenlage φ von großem grundsätzlichen Interesse für ein ganzes physikalisches Teilgebiet, die Ultrakurzpulsphysik (siehe Ausblick). Mit der beschriebenen Methode zur Kontrolle von f_0 läßt sich zwar nicht φ selbst beobachten, sie könnte jedoch in Kombination z. B. mit einem ATI-Experiment den Schlüssel zu deren Bestimmung liefern. Die beschriebene Schwebungsfrequenz zwischen einer Mode des Kamms und der zweiten Laserharmonischen, bzw. des frequenzverdoppelten Modenkamms, ließe sich dabei auf eine Radiofrequenz-Referenz phasenstabilisieren und könnte in einem „lock-in“ Verfahren selbst als Referenzfrequenz dienen, um das erwartete schwache Signal aus dem ATI-Experiment phasensensitiv zu detektieren.

Kapitel 3

Kurze Pulse, Dispersion und Nichtlinearitäten

Der wesentliche Vorteil der Frequenzmessung mit modengekoppelten Lasern gegenüber bisher verwendeten Methoden ist ihre Fähigkeit, eine sehr genau bekannte Radiofrequenz in einem einzigen Schritt auf die Größe eines möglichst großen optischen Frequenz-Intervalls zu multiplizieren. Der Multiplikations-Faktor und damit die Leistungsfähigkeit des Systems ist hauptsächlich durch die Bandbreite des erzeugten Spektrums bestimmt. Sowohl bei der Erzeugung von Femtosekundenpulsen als auch bei ihrer spektralen Verbreiterung spielen dispersive und nichtlineare Effekte eine Schlüsselrolle. Auch im Hinblick auf die momentane Entwicklung zu breiteren Spektren (siehe Ausblick) wird es immer wichtiger, diese Effekte zu verstehen und zu kontrollieren. Dieses Kapitel gibt einen Überblick über die für die Erzeugung des Frequenzkamms relevanten Effekte und Techniken der Femtosekunden-Optik als theoretische Basis für die weiteren Kapitel.

3.1 Dispersion von ultrakurzen Pulsen

Bei der Propagation eines ultrakurzen Pulses durch ein optisch durchsichtiges Medium (venachlässigbare Absorption) treten Effekte zweier Kategorien auf: lineare dispersive Effekte aufgrund einer Frequenzabhängigkeit des Brechungsindex und nichtlineare intensitätsabhängige Effekte. Die Dispersion bestimmt Ausbreitungsgeschwindigkeit und Veränderung der Form des Pulses bei unverändertem Spektrum, während Nichtlinearitäten zu Verbreiterung des Spektrums (Selbst-Phasenmodulation) und Veränderung der räumlichen Strahlstruktur (Selbst-Fokussierung) führen können.

Beide Effekte werden durch den Zusammenhang zwischen der makroskopischen Polarisation

\mathbf{P} und dem elektrischen Feld \mathbf{E} in der Wellengleichung in Materie beschrieben:

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P} . \quad (3.1)$$

Der Zusammenhang zwischen \mathbf{P} und \mathbf{E} kann linear angenähert werden bei elektrischen Feldern, die klein gegen die Felder sind, denen die Elektronen des Mediums durch die Coulomb-Anziehung der Kerne ausgesetzt sind (einige 10^9 V/cm, entsprechend einer Laserintensität von $\approx 10^{16}$ W/cm²). In isotropen Medien gilt damit für die Fourier-Transformierten im Frequenzraum die multiplikative Beziehung $\tilde{\mathbf{P}}(\omega) = \varepsilon_0 \chi(\omega) \tilde{\mathbf{E}}(\omega)$ mit einer dimensionslosen Konstante χ , der elektrischen Suszeptibilität. Die Tatsache, daß die lineare Antwort des Mediums im allgemeinen nicht instantan ist, sondern die Polarisierung verzögert reagiert, drückt sich in der zeitlich Fourier-transformierten Wellengleichung durch die Frequenzabhängigkeit (Dispersion) des Brechungsindex $n(\omega)$ aus:

$$\nabla^2 \tilde{\mathbf{E}} + n^2(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} \tilde{\mathbf{E}} = 0 \quad \text{mit} \quad n^2(\omega) = 1 + \chi(\omega) . \quad (3.2)$$

Die Gleichung wird durch lineare Überlagerung der wohlbekannten Wellenfunktionen $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \text{Re} \left(\mathbf{E}_0 e^{i(\mathbf{k}(\omega)\mathbf{r} - \omega_0 t)} \right)$ gelöst, wobei (in isotropen Medien) die Materialeigenschaften allein durch die Funktion¹

$$k(\omega) = \omega \frac{n(\omega)}{c} \quad (3.3)$$

ausgedrückt werden.

Das Verhalten eines Pulses in einem dispersiven Medium läßt sich am besten mit Hilfe einer Reihenentwicklung der Wellenzahl $k(\omega)$ um die Zentralfrequenz ω_0 verstehen:

$$k(\omega) = k_0 + k' \Omega + \frac{1}{2} k'' \Omega^2 + \dots . \quad (3.4)$$

Dabei seien $k_0 = k(\omega_0)$ und $\Omega = (\omega - \omega_0)$ im Folgenden benutzte Abkürzungen. Sei nun das elektrische Feld (eine Komponente) eines Pulses beschrieben durch den Realteil von

$$E(z, t) = A(z, t) e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} , \quad (3.5)$$

wobei $A(z, t)$ eine langsam veränderliche (komplexwertige) Einhüllenden-Funktion ist. Dann kann, wie in Anhang B gezeigt, die Propagation der Einhüllenden-Funktion in Orts- und Zeit-raum mit Hilfe ihrer Fourier-Transformierten $\tilde{A}(z, \omega)$ beschrieben werden durch:

$$A(z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{A}(z=0, \Omega) e^{i((k(\omega) - k_0)z - \Omega t)} d\Omega . \quad (3.6)$$

¹Es soll mit $k(\omega)$ immer die Wellenzahl im Medium bezeichnet werden, d. h. $\omega/k(\omega) = c/n(\omega)$, jedoch mit $\lambda = 2\pi c/\omega = 2\pi n/k$ die Vakuumwellenlänge.

Material	GVD: k'' in fs ² /cm	TOD: k''' in fs ³ /cm
Quarzglas	360	270
BK7	450	330
SF10	1590	1040
Ti:Saphir	580	420
Luft (1 bar, 20° C)	ca. 0.19	–

Tabelle 3.1: Daten für die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) und Dispersion dritter Ordnung (TOD) für einige gebräuchliche optische Materialien bei $\lambda = 800$ nm. Daten nach [Kas97].

Bricht man die Entwicklung der Dispersionsrelation (Gleichung 3.4) nach dem linearen Glied ab, so erhält man

$$A(z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{A}(z=0, \Omega) e^{-i\Omega(t-k'z)} d\Omega = A(z=0, t-k'z). \quad (3.7)$$

Der lineare Term in der Entwicklung verändert also die Form eines beliebigen Pulses nicht, der Puls läuft mit der Gruppengeschwindigkeit $v_g = k'(\omega_0)^{-1} = \partial\omega_0/\partial k$ durch das Medium hindurch. Eine Veränderung der Pulslänge und -form bewirken erst die Terme höherer Ordnung, in erster Linie die Dispersion zweiter Ordnung oder Dispersion der Gruppengeschwindigkeit² (engl. group velocity dispersion, GVD), $k'' = \partial^2 k(\omega_0)/\partial\omega^2$.

Bei Pulsen großer spektraler Bandbreite läßt sich sicherlich die Frequenzabhängigkeit der Gruppengeschwindigkeit nicht vernachlässigen. In der Nähe von ω_0 läßt sie sich linear approximieren:

$$v_g(\omega) = k'(\omega)^{-1} \approx v_g(\omega_0) - k''(\omega_0) v_g^2(\omega_0) (\omega - \omega_0) \quad (3.8)$$

Dabei ist k'' bei allen gebräuchlichen optischen Materialien im sichtbaren und nahen Infrarotbereich positiv (siehe Tabelle 3.1). Die roten Anteile eines Pulses laufen daher schneller als die blauen Anteile, der Puls erfährt eine zunehmende zeitliche Verbreiterung.

Dies läßt sich unter der Annahme einer Gauss-förmigen Einhüllendenfunktion analytisch beschreiben, wenn näherungsweise die Dispersion dritter und höherer Ordnung vernachlässigt wird. Tatsächlich haben die Pulse aus modengekoppelten Lasern zwar eher die Form eines Secans hyperbolicus (siehe Abschnitt 4.1), jedoch ist nur für Gauss-förmige Pulse das Dispersionsverhalten analytisch beschreibbar. Aufgrund der sehr ähnlichen Formen stellt dies jedoch ein

² Oft wird mit GVD auch die Größe $dv_g/d\lambda = (\omega^2 v_g^2 / 2\pi c) k''(\omega)$ bezeichnet, die hier benutzte Definition folgt [Die96]. Bei optischen Elementen mit einer Propagationslänge z wird häufig auch der integrale Beitrag $D_2 = k''z$ als GVD bezeichnet.

gute Näherung dar. In Tabelle 3.4 sind die wichtigsten Eigenschaften der beiden Pulsformen zusammengestellt.

Bei $z = 0$ laufe ein Puls der Form $E_0 e^{-\Gamma t^2} e^{-i\omega_0 t}$ in das Medium hinein. Dabei soll $\Gamma = a + ib$ als komplexe Zahl zugelassen werden, wobei $\tau = 1/\sqrt{a}$ die halbe zeitliche $1/e^2$ -Breite der Pulsintensität ist. Es ist also:

$$E(z = 0, t) = E_0 e^{-(t/\tau)^2} e^{-i(\omega_0 + bt)t} . \quad (3.9)$$

Der Parameter b beschreibt hier also ein lineares Ansteigen ($b > 0$) bzw. Abfallen ($b < 0$) der Momentanfrequenz innerhalb des Pulses, (engl. „up-chirp“ bzw. „down-chirp“, diese Ausdrücke sollen ohne Übersetzung weiterhin verwendet werden). Die Entwicklung der Einhüllenden $A(z = 0, t) = E_0 e^{-\Gamma t^2}$ als Funktion der durchlaufenen Strecke wird durch Gleichung 3.6 beschrieben, wobei hier nun auch zusätzlich der quadratische Term in Ω berücksichtigt wird, der zu einer Änderung der Pulsbreite führt.

Die Berechnung des Integrals führt auf die folgende Beziehung zwischen dem anfänglichen Pulsparameter Γ und dem Parameter Γ_z nach Durchlaufen der Strecke z :

$$\frac{1}{\Gamma_z} = \frac{1}{\Gamma} - 2ik''z . \quad (3.10)$$

Die Pulsbreite $\tau_z = 1/\sqrt{\text{Re}(\Gamma_z)}$ verändert sich während der Propagation des Pulses wie in Abbildung 3.1 gezeigt. Geht man von einem anfänglichen Puls ohne chirp aus, d.h. $\Gamma = 1/\tau_0^2$ reell (entsprechend $z = 0$ in Abbildung 3.1), dann berechnet sich die Pulsbreite aus Gleichung 3.10 zu

$$\tau_z = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{2k''z}{\tau_0^2} \right)^2} = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_D} \right)^2} . \quad (3.11)$$

Dabei ist $z_D = \tau_0^2/2k''$ eine charakteristische Länge, nach der sich die Pulsdauer um $\sqrt{2}$ vergrößert hat. Der allgemeine Fall eines Pulses mit anfänglichem chirp ist in dieser Gleichung für Anfangswerte $z \neq 0$ enthalten. Bei normaler Dispersion ($k'' > 0$) wird die Dauer eines Pulses mit „up-chirp“ (rote Frequenzen laufen voraus, $b > 0$) also ständig größer. Dagegen wird ein Puls mit „down-chirp“ (blaue Frequenzen laufen schneller, $b < 0$ und entsprechend $z < 0$) zuerst einmal kürzer, bis er seine minimale Dauer (bei verschwindenden Chirp-Parameter) bei $z = 0$ erreicht. Danach beginnt er wieder mit zunehmendem „up-chirp“ auseinander zu laufen.

Da bei der Dispersion nur lineare Effekte zum Tragen kommen, ändert sich das Spektrum des Pulses während der Propagation nicht, es ist Gauss-förmig mit einer vollen Intensitäts-Halbwertsbreite von $\Delta\omega = 1.177/\sqrt{\text{Re}(1/4\Gamma)} = 2.355\tau^{-1}\sqrt{1 + (b/a)^2}$ (siehe Tabelle 3.4). Das Produkt aus Bandbreite und Pulsdauer ist daher:

$$\tau_{1/2} \Delta\nu = 0.411 \sqrt{1 + \left(\frac{b}{a} \right)^2} . \quad (3.12)$$

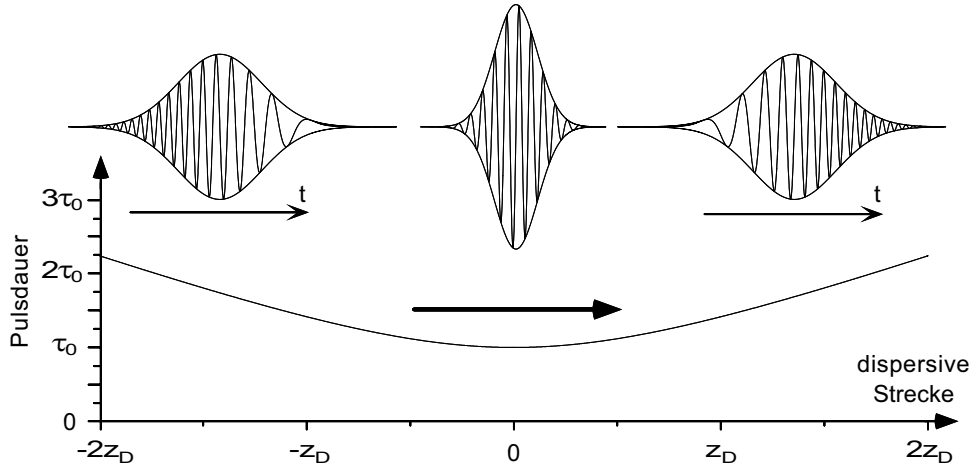


Fig. 3.1: Effekt der Gruppengeschwindigkeitsdispersion auf einen Puls: Material normaler GVD ($k''(\omega) > 0$) läßt einen Puls mit „down-chirp“ erst auf minimale, bandbreitenbegrenzte Länge zusammenlaufen, bevor sich die Pulsdauer wieder vergrößert und der Puls einen zunehmenden „up-chirp“ entwickelt. Die verwendeten Größen τ_0 und z_D sind die minimale Pulsdauer und die dispersive Länge $z_D = \tau_0^2 / 2k''$.

Bei gegebenem Spektrum sind Pulse ohne chirp die kürzest möglichen, sie werden daher auch „bandbreitenbegrenzt“ genannt.

Die Vorgänge beim Durchgang von Gauss-Pulsen durch ein dispersives Medium lassen sich sehr elegant veranschaulichen, wenn man die exakte Analogie zur Beugung von Gauss'schen Strahlen heranzieht. So lassen sich viele Begriffe direkt übersetzen: Die Pulslänge $\tau(z)$ verhält sich exakt wie der Strahlradius $w(z)$ eines Gauss'schen Strahls, wobei die Rayleighlänge $z_R = \pi n w_0^2 / \lambda$ der dispersiven Länge $z_D = \tau_0^2 / 2k''$ entspricht. Analog zu dem komplexen Strahlparameter in der Gauss'schen Strahlenoptik verhält sich hier der komplexe Parameter $1/\Gamma$, und der Krümmungsradius der Wellenfronten entspricht hier dem Chirp-Parameter b .

Im Zusammenhang mit der weiteren Untersuchung der nichtlinearen Effekte ist es instruktiv, eine Differentialgleichung herzuleiten, die die Entwicklung $(\partial/\partial z)A(z, t)$ der Einhüllenden in einem mit Geschwindigkeit $v_g(\omega_0)$ mitbewegten Koordinatensystem durch Einführen der mitbewegten Koordinaten $\zeta = z, \tau = t - z/v_g$ beschreibt³. Unter der Annahme einer langsam veränderlichen Einhüllenden (d.h. die Pulslänge beträgt viele optische Zyklen), lassen sich dabei Vereinfachungen der Wellengleichung (Gleichung 3.1) vornehmen. Vernachlässigt man Terme dritter und höherer Ordnung in der Dispersion, dann erhält man aus der Wellengleichung

³Das Maximum der zeitlichen Pulsfunktion bleibt für verschiedene ζ immer im Bereich um $\tau = 0$.

(nach Division durch $2ik_0 e^{i(k_0 z - \omega_0 t)}$) die Gleichung

$$\frac{\partial}{\partial \zeta} A(\zeta, \tau) + \frac{i}{2} k'' \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} A(\zeta, \tau) = 0. \quad (3.13)$$

Diese Schrödinger-Gleichung beschreibt genau das oben analysierte Dispersionsverhalten eines Wellenpaketes, wie sich leicht durch Lösen der mit $\tau \rightarrow \Omega$ Fourier-transformierten Gleichung überprüfen läßt.

3.2 Kompensation der Gruppengeschwindigkeitsdispersion

In den meisten praktischen Fällen ist man daran interessiert, möglichst kurze Pulse mit hoher Spitzenintensität zu erzeugen. Im Infraroten kann man in Bereichen mit verschwindender GVD arbeiten (bei Quarzglas $\lambda = 1.27 \mu\text{m}$). Im sichtbaren und nah-infraroten Bereich (normale Dispersion, $k'' > 0$) führen die oben beschriebenen dispersiven Effekte jedoch zu einem ständigen Auseinanderfließen von kurzen Pulsen. Eine wichtige Frage ist daher, ob man mit optischen Elementen solche Pulse wieder komprimieren kann, d. h. ein effektives $k'' < 0$ erzeugen kann. Dies ist tatsächlich auf rein geometrischem Weg möglich: Zerlegt man einen Puls in seine spektralen Komponenten und sorgt dafür, daß die roten Frequenzanteile einen längeren Weg als die blauen zurücklegen müssen, bevor die Komponenten wieder zusammengefügt werden, so kann man ein effektives $k'' z < 0$ erreichen. Dies kann mit einer Anordnung aus mehreren Gittern oder Prismen erreicht werden. Mit einer Anordnung aus einem Gitterpaar (siehe [Die96], erstmals 1969 von E. B. Treacy verwendet, [Tre69]) lassen sich große negative Werte D_2 (Def. siehe Fußnote 2 auf S. 22) in der Größenordnung 10^6 fs^2 realisieren, allerdings treten hohe Reflexionsverluste von mindestens 20% auf. Diese „Gitterkompressoren“ spielen eine wichtige Rolle bei der Nachverstärkung von ultrakurzen Pulsen durch „chirped pulse amplification“ [Die96].

In Anwendungen innerhalb eines Resonators oder bei der Kompression typischer moderater GVD-Werte (einige 100 fs^2), kann man einen sog. Prismenkompressor verwenden ([For84, Gor84]). Eine solche Anordnung aus zwei Prismen und einem Plan- bzw. Dachspiegel ist in Abbildung 3.2 gezeigt.

Als rein geometrischer Effekt wird in diesem Aufbau negative Gruppengeschwindigkeitsdispersion erzeugt. Der Puls wird durch ein Prisma spektral zerlegt, ein zweites Prisma erzeugt wieder ein paralleles Strahlenbündel. Die nun örtlich getrennten Spektralkomponenten werden durch nochmaliges Durchlaufen der Anordnung wieder zusammengeführt. Da die optischen Wege für verschiedene Frequenzen unterschiedlich lang sind, ist die Phasen-Laufzeit frequenzabhängig. Für die einzelnen spektralen Komponenten ist somit die beim Durchgang akkumulierte örtliche Phase (e^{ikz} -Anteil):

$$\varphi(\omega) = \frac{\omega}{c} l_{\text{opt}}(\omega) \approx \varphi(\omega_0) + \varphi'(\omega_0)(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \varphi''(\omega_0)(\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (3.14)$$

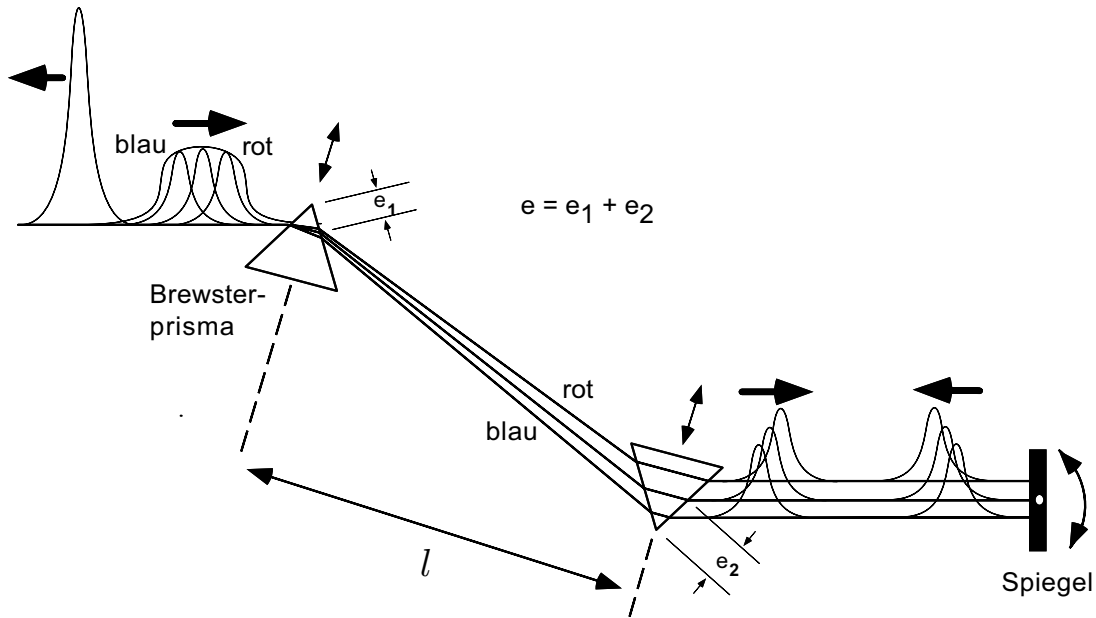


Fig. 3.2: *Prismen-Kompressor: Anordnung zur Kompensation von positiver GVD, die Pulse in Material normaler Dispersion erfahren. Schematisch dargestellt: Ein einlaufender Puls mit „up-chirp“, als Summe von Einzelpulsen verschiedener Frequenzen vorstellbar; und die geometrischen Wege dieser Komponenten. Der gezeigte Spiegel ist ein Planspiegel im linearen Laser-Resonator (in unserem Aufbau verkipfbar; s. Abschnitt 4.2), oder ein Dachspiegel in einem externen Kompressor. Die Länge $e = e_1 + e_2$ ist ein Maß für die Menge an dispersivem Material im Strahlengang.*

Die hier auftretenden Terme verhalten sich analog wie die Terme in der Entwicklung der Wellenzahl $k(\omega)$: Der lineare Term ändert die Form eines Wellenpaketes nicht, sondern bestimmt die Gruppen-Laufzeit (analog zur Gruppengeschwindigkeit in Gleichung 3.4). Der Koeffizient des quadratischen Terms $(\partial^2 \varphi / \partial \omega^2)(\omega_0)$ beschreibt die Frequenzabhängigkeit der Gruppen-Laufzeit, also die integrale Gruppengeschwindigkeitsdispersion D_2 dieses optischen Elements. Es zeigt sich, daß diese geometrische Konfiguration, unabhängig vom Vorzeichen von $dn/d\omega$, immer zu einem negativen Koeffizienten $D_2 = \varphi''(\omega) \propto -l (dn/d\omega)^2 \omega$ führt (siehe z. B. [Die96]). Wie in Abb. 3.2 dargestellt, nimmt somit die Gruppen-Laufzeit linear mit steigender Frequenz ab, Pulse mit „up-chirp“ werden komprimiert. Da der quadratische Term in der Entwicklung von $\varphi(\omega)$ in Potenzen von $(\omega - \omega_0)$ hier ausschlaggebend ist, spricht man auch von einem „quadratischen Kompressor“.

Zusätzlich zur negativen geometrischen GVD addiert sich im realen Aufbau die positive GVD des Prismenmaterials. Durch mehr oder weniger weites Hineinfahren der Prismen in den Strahlengang läßt sich der Wert D_2 des Kompressors auf die einlaufenden Pulse fein-abstimmen. In Tabelle 3.2 sind Formeln zur Berechnung von D_2 für gängige Prismenmaterialien aufgeführt.

Prismenmaterial	GVD: D_2 in fs ²	TOD: D_3 in fs ³
Quarz	$1659.6e - 21.6l$	$1269.4e - 24.2l$
SF10	$6604.2e - 178.0l$	$4681.8e - 444.2l$
Saphir	$2348.4e - 52.0l$	$1732.8e - 65.2l$

Tabelle 3.2: Berechnung der Gruppengeschwindigkeitsdispersion und Dispersion dritter Ordnung für einige Prismenmaterialien (doppelter Durchgang durch die Anordnung). Prismenabstand l (in cm) und Länge $e = e_1 + e_2$ (in cm) als Maß für den Weg im Material wie in Abbildung 3.2. Daten nach [Kas97].

Da man auf diese Art den Einfluß der GVD auf kurze Pulse kontrollieren kann, werden Dispersions-Terme höherer Ordnung entscheidend, wie Dispersion dritter Ordnung, $D_3 = k'''(\omega)z$, und vierter Ordnung, $D_4 = k''''(\omega)z$ (engl. third order dispersion, TOD, und fourth order dispersion, FOD). Diese verändern die Form der Pulseinhüllenden und begrenzen die Komprimierbarkeit kurzer Pulse. Gerade bei der Erzeugung immer kürzerer Pulse von wenigen Femtosekunden Dauer und mit einem sehr breiten Spektrum von vielen zehn Nanometern werden diese Terme in der Entwicklung von $k(\omega)$ zum begrenzenden Faktor. Der Wahl der dispersiven Elemente innerhalb eines Laserresonators kommt dabei entscheidende Bedeutung zu. Hier gilt es, lange Laufstrecken in dispersivem Material zu vermeiden und Materialien mit geringer Dispersion zu verwenden. Auch bei Prismenkompressoren kommt diese Eigenschaft zum Tragen: So kann zwar GVD kompensiert werden, gleichzeitig wird aber Dispersion höherer Ordnung eingeführt (siehe Tabelle 3.2). Die Wahl des richtigen Prismenmaterials ist dabei essentiell. In Titan-Saphir-Lasern zur Erzeugung von Pulsen im Bereich < 10 fs bei einer Wellenlänge von ca. 800 nm hat sich dabei Quarzglas (bei relativ großem Prismenabstand) als das günstigste Material erwiesen [Pro92, Pro93], in dem von uns verwendeten Laser (Modell Mira 900, Coherent, Inc.) mit einer weniger kritischen Pulslänge von 70 fs wird hochdispersives Schwer-Flintglas SF10 verwendet.

Seit Anfang der 1990er Jahre sind auch sogenannte dispersive Spiegel verfügbar [Szi94], die durch geschickt gewählte Dicken der auf das Spiegelsubstrat aufgedampften dielektrischen Schichten ein unterschiedlich tiefes Eindringen der verschiedenen Frequenzkomponenten des Pulses in das Spiegelmaterial – und dadurch negative GVD über einen gewissen Frequenzbereich – bewirken. In den Lasern zur Erzeugung kürzester Pulse werden ausschließlich diese Spiegel oder eine Kombination aus dispersiven Spiegeln und Quarzglas-Prismenkompressoren verwendet [Szi94].

3.3 Propagation eines Pulses durch ein nichtlineares Medium

In einem modengekoppelten Festkörperlaser werden durch die extreme Konzentration der Lichtenergie in kurzen Pulsen Intensitäten bis zu einigen 10^{11} W/cm² erreicht. Bei den dabei auftretenden hohen Feldstärken, die nur noch etwa um zwei bis drei Größenordnung unter den atomaren Bindungsfeldstärken liegen, dürfen in einem Medium Nichtlinearitäten in der Bindung der Elektronen im Kernpotential nicht mehr vernachlässigt werden. Makroskopisch können diese durch nichtlineare Terme in der elektrischen Suszeptibilität beschrieben werden:

$$P_i = \varepsilon_0 (\chi_{i,k}^{(1)} E_k + \chi_{i,kl}^{(2)} E_k E_l + \chi_{i,klm}^{(3)} E_k E_l E_m + \dots) , \quad (3.15)$$

wobei $\chi^{(1)}$ der bisher berücksichtigte lineare Anteil der Suszeptibilität ist. Die hier interessierenden Effekte (Selbst-Phasenmodulation und Selbst-Fokussierung) sind alle unabhängig von eventuellen Anisotropien des verwendeten Materials, deshalb beschränkt sich die weitere Diskussion auf isotrope Medien. In diesen verschwinden aus Punktsymmetrie-Gründen alle Terme gerader Ordnung in Gleichung 3.15, so daß als dominanter nichtlinearer Term der Entwicklung $P_i^{(\text{NL})} = \varepsilon_0 \chi_{i,klm}^{(3)} E_k E_l E_m$ übrig bleibt, im isotropen Fall

$$\mathbf{P}^{(\text{NL})}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \chi_{x,xxx}^{(3)} |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (3.16)$$

mit $\chi_{x,xxx}^{(3)}$ bei Polarisation in x-Richtung (Indizes werden im weiteren weggelassen).

Auch die nichtlineare Polarisation zeigt Dispersion, jedoch sind die dabei auftretenden Verzögerungszeiten bei den verwendeten Materialien (nicht-dotierte Gläser, Quarz, Saphir) sehr kurz, sie wurden experimentell noch nicht bestimmt, eine obere Grenze läßt sich jedoch mit 2 fs [Kas97] angeben. Daher sollen sie bei dieser elementaren Betrachtung vernachlässigt werden, bei zukünftigen Experimenten mit Pulsen im Bereich weniger Femtosekunden könnte nichtlineare Dispersion allerdings eine Rolle spielen.

Bei ebenen Wellen bzw. Pulsen mit $E(z, t) = \text{Re} \left(A(z, t) e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} \right)$ mit langsam gegenüber der Periode des Lichtfelds veränderlicher Amplitude enthält $\mathbf{P}^{(\text{NL})}$ Terme der Frequenz ω_0 und $3\omega_0$. Aufgrund der bei isotropen Materialien im allgemeinen fehlenden Phasenanpassung [Boy91] spielen nur die Terme der Grundschiwingung eine Rolle, die durch

$$P^{(\text{NL})}(z, t) = \varepsilon_0 \varepsilon_{\text{NL}} E(z, t) , \quad \varepsilon_{\text{NL}} = \frac{3}{4} \chi^{(3)} |A(z, t)|^2 \quad (3.17)$$

als kleine Störung in der Wellengleichung (Gln. 3.1 und 3.2) berücksichtigt werden können. Damit läßt sich die Nichtlinearität als kleine intensitätsabhängige Korrektur an den linearen Brechungsindex berücksichtigen mit $n_{\text{tot}}^2(\omega) = n^2(\omega) + \varepsilon_{\text{NL}}$.

Material	linearer Brechungsindex n	nichtlinearer Brechungsindex n_2 in $10^{-16} \text{cm}^2/\text{W}$
Quarzglas	1.49	2.7
BK7	1.52	3.4
Saphir	1.77	2.5
Luft (1 bar)	1.00	0.22

Tabelle 3.3: Werte für den linearen Brechungsindex n und nichtlinearen Brechungsindex n_2 für häufig gebrauchte optische Materialien bei $\lambda = 1 \mu\text{m}$ (gesamter Brechungsindex: $n_{\text{tot}} = n + n_2 I$). Daten nach [Ber93]. Die angegebenen Werte für n_2 sind nur als Richtwerte zu betrachten, da stark unterschiedliche Werte in der Literatur zu finden sind.

Damit gilt die fundamentale Beziehung für den totalen Brechungsindex:

$$n_{\text{tot}}(\omega) = n(\omega) + n_{\text{NL}} |A(z, t)|^2 \quad (3.18)$$

mit

$$n_{\text{NL}} = \frac{3}{8n} \chi^{(3)} . \quad (3.19)$$

Oder, mit der Intensität⁴ $I(z, t) = \frac{1}{2} n \varepsilon_0 c |A(z, t)|^2$ ausgedrückt:

$$n_{\text{tot}} = n(\omega) + n_2 I , \quad (3.20)$$

wobei

$$n_2 = \frac{3}{4n^2 \varepsilon_0 c} \chi^{(3)} = \frac{2}{n \varepsilon_0 c} n_{\text{NL}} . \quad (3.21)$$

Mit dieser Beziehung läßt sich leicht intuitiv der Einfluß der Nichtlinearität verstehen: Sie ändert lokal räumlich bzw. zeitlich den Brechungsindex. Durch gaussförmige Strahlform kann dabei eine Linse erzeugt werden, die den Strahl fokussiert (optischer Kerr-Effekt, Abschnitt 3.6). Durch intensitätsabhängige Laufzeiten der Abschnitte eines Pulses werden Phasenverschiebungen innerhalb des Pulses erzeugt (Selbst-Phasenmodulation, im folgenden Abschnitt diskutiert). Tabelle 3.3 stellt die nichtlinearen Brechungsindizes für einige wichtige optische Materialien zusammen.

⁴In diesen Gleichungen geht die über die optischen Zyklen *gemittelte* Intensität, nicht die momentane Intensität ein!

3.4 Selbst-Phasenmodulation

Das zeitliche Verhalten eines Pulses beim Durchgang durch ein nichtlineares Medium läßt sich am besten anhand der Differentialgleichung im mitbewegten System verstehen (Gleichung 3.13). Für die Diskussion der folgenden beiden Abschnitte sei die transversale räumliche Abhängigkeit der Felder vernachlässigt. Dies ist streng genommen nur für ebene Wellen gültig, die Gleichungen sind jedoch in effektiver Form bei den geführten Moden optischer Lichtwellenleiter (mit stationärem transversalem Strahlprofil) realisiert. Hierbei muß jedoch nun noch der Beitrag der nichtlinearen Polarisierung (Gleichung 3.17) durch die rechte Seite der Wellengleichung 3.1 berücksichtigt werden:

$$\begin{aligned}\mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P^{(\text{NL})} &= 2\varepsilon_0 \mu_0 n_{\text{NL}} n \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left(|A(z, t)|^2 A(z, t) e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} \right) \\ &= -2k_0^2 \frac{n_{\text{NL}}}{n} |A(z, t)|^2 A(z, t) e^{i(k_0 z - \omega_0 t)},\end{aligned}\quad (3.22)$$

wobei die zeitlichen Ableitungen der Einhüllenden vernachlässigt wurden (Näherung langsam veränderlicher Einhüllender). Die Differentialgleichung wird dadurch zur „Nichtlinearen Schrödingergleichung“

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{i}{2} k'' \frac{\partial^2}{\partial t^2} - i k_0 \frac{n_{\text{NL}}}{n} |A(z, t)|^2 \right) A(z, t) = 0. \quad (3.23)$$

Ab hier sollen z und t , der übersichtlicheren Schreibweise wegen, die *Koordinaten im mitbewegten System* bedeuten.

Vernachlässigt man zunächst einmal die Dispersion ($k'' = 0$), dann läßt sich mit Hilfe dieser Gleichung direkt der Effekt der Selbst-Phasenmodulation von intensiven Pulsen verstehen: Mit Hilfe von Gleichung 3.23 berechnet man direkt $\partial/\partial z (AA^*) = \partial A/\partial z A^* + A \partial A^*/\partial z = 0$, d. h. es ändert sich der zeitliche Intensitätsverlauf des Pulses während der Propagation nicht, $A(z, t)$ sammelt jedoch einen intensitätsabhängigen Phasenfaktor auf (dabei wird die intensitätsbezogene nichtlineare Brechzahl $n_2 I(t) = n_{\text{NL}} |A(0, t)|^2$ verwendet):

$$A(z, t) = A(z=0, t) e^{i\varphi(z, t)} \quad \text{mit} \quad \varphi(z, t) = \frac{n_2 k_0}{n} I(t) z. \quad (3.24)$$

Die Pulseinhüllende verändert sich dabei nicht, jedoch wird die Phase des Lichtfeldes proportional zur Momentanintensität verzögert ($n_2 > 0$), so daß der Puls einen chirp erfährt. An der vorderen (ansteigenden) Flanke des Pulses werden die optischen Zyklen „auseinandergezogen“, an der hinteren (abfallenden) „gestaucht“ (siehe Abbildung 3.3). Die Momentanfrequenz des elektrischen Feldes (zeitliche Ableitung der Phase) berechnet sich dann zu:

$$\omega(z, t) = \frac{\partial}{\partial t} (\omega_0 t - \varphi(z, t)) = \omega_0 \left(1 - \frac{z}{c} n_2 \frac{dI(t)}{dt} \right). \quad (3.25)$$

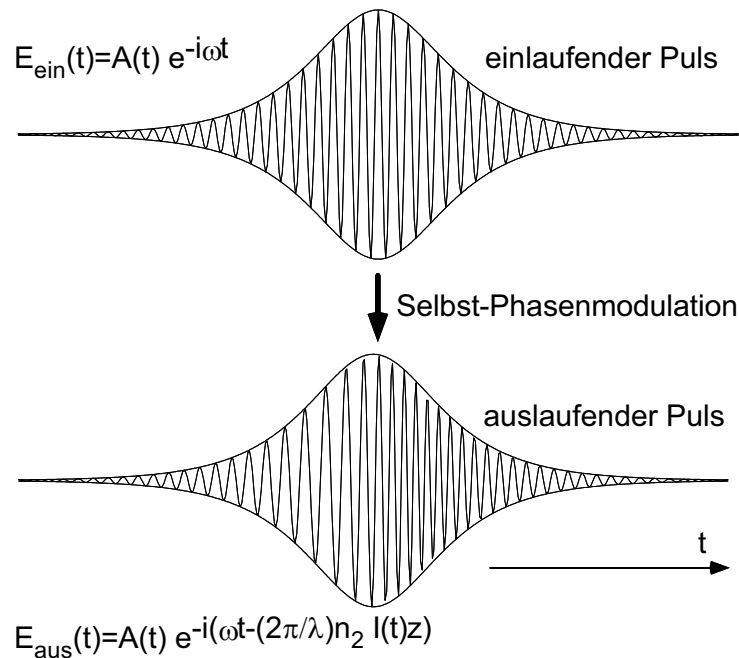


Fig. 3.3: *Effekt der Selbst-Phasenmodulation auf einen Puls: Die Pulseinhüllende ändert sich (bei den hier erfolgten Näherungen) nicht. Die momentane Phase wird jedoch proportional zur momentanen Intensität verzögert. Erzeugung neuer Frequenzkomponenten an den Flanken ist die Folge.*

Die Modulationstiefe durch Selbst-Phasenmodulation hängt hier von der Steilheit der Pulsflanken ab, skaliert also proportional zur Spitzenintensität und zur reziproken Pulsdauer. Ein bandbreitebegrenzter Puls behält also bei der Propagation durch das Medium seine Form bei, erhält jedoch einen – in der Nähe der Pulsmitte recht gut linearen – „up-chirp“. Das heißt, der Puls ist danach nicht mehr bandbreitebegrenzt, er ist spektral verbreitert worden: die Selbst-Phasenmodulation erzeugt neue Frequenzkomponenten. Auch für die Selbst-Phasenmodulation läßt sich eine charakteristische Länge z_{NL} angeben, nach der die Phase am Pulsmaximum um 1 Radian verschoben wurde [Die96]:

$$z_{\text{NL}} = \frac{n}{n_2 k_0 I_0} . \quad (3.26)$$

Diese Länge liefert auch eine Skalierung für die spektrale Verbreiterung von Pulsen. Für einen Gauss-Puls $E(z = 0, t) = A_0 e^{-(t/\tau)^2} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)}$ ergibt sich

$$A(z, t) = A_0 e^{-(t/\tau)^2} \exp\left(i \frac{z}{z_{\text{NL}}} e^{-2(t/\tau)^2}\right) . \quad (3.27)$$

Nähert man im Phasenterm den chirp durch einen linearen chirp an, d. h. $e^{-2(t/\tau)^2} \approx (1 - 2(t/\tau)^2)$, dann ergibt sich ein Chirp-Parameter $b = 2(z/z_{\text{NL}})1/\tau^2$, was (wegen Gleichung 3.12) bei gleichbleibender Pulslänge zu einer spektralen Verbreiterung um einen Faktor

$\sqrt{1 + (b/a)^2} = \sqrt{1 + (2z/z_{\text{NL}})^2}$ führt. Analog zur zeitlichen Verbreiterung durch Dispersion, die mit z_D skaliert (Gleichung 3.11), skaliert hier die spektrale Verbreiterung mit z_{NL} . Bei der erfolgten Näherung ist dies allerdings nur eine grobe Abschätzung, insbesondere weicht die Form des Spektrums bei $z/z_{\text{NL}} > 1$ stark von einer Gaußskurve ab.

Wie in Abschnitt 3.3 erwähnt, ist die Annäherung der nichtlinearen Antwort des Mediums $\chi^{(3)}$ durch einen frequenzunabhängigen Brechungsindex n_2 nur gültig für Pulsdauern, die die Antwortzeit des Mediums deutlich überschreiten. In Gläsern ist dies für Pulse länger als ca. 10 fs, also in fast allen praktischen Fällen, erfüllt, in Medien mit anderen als elektronischen Nichtlinearitäten jedoch nicht. Für kürzere Pulse als diese Antwortzeit muß man zusätzlich noch die Dispersion von $\chi^{(3)}$ berücksichtigen, was dazu führt, daß auch die zeitliche Ableitung der Pulsform zur nichtlinearen Antwort beiträgt. Die Zusatzterme führen nicht nur zu einer Änderung der Phase, sondern beeinflussen auch die Pulsform: Je nach Vorzeichen der Dispersion von $\chi^{(3)}$ führt dies zu einer Aufsteilung der führenden bzw. der abfallenden Pulsflanke. Eine ausführlichere Diskussion findet sich in [Die96], S. 142.

3.5 Zusammenspiel zwischen Dispersion und Selbst-Phasenmodulation

Im Regime normaler Dispersion ($k'' > 0$, für Quarzglas z. B. bei $\lambda < 1.27\mu\text{m}$) bewirkt bei $z_D \approx z_{\text{NL}}$ sowohl die Gruppengeschwindigkeitsdispersion als auch die Selbst-Phasenmodulation einen zunehmenden „up-chirp“ des Pulses. Die Selbst-Phasenmodulation erzeugt an der vorderen Flanke zusätzliche rote Frequenzen, die aufgrund der Dispersion schneller vorwärts laufen als bei einem nicht modulierten Puls: d. h. das Wellenpaket zerfließt schneller als im rein dispersiven Fall und nimmt eine rechteckige zeitliche Gestalt an. Die Spitzenintensität nimmt rasch ab, so daß nach einer bestimmten Strecke keine Selbst-Phasenmodulation mehr stattfindet [Tom84]. Interessant ist die Frage nach einer praktisch sinnvollen Materiallänge, nach der das Spektrum einen bestimmten Prozentsatz seiner maximalen Breite erreicht hat. Die nichtlineare Schrödingergleichung 3.23 kann in diesem Fall nur numerisch gelöst werden, jedoch läßt sich das Zusammenspiel mit einem einfachen heuristischen Modell verstehen, das in [Die96], S. 351 vorgestellt wird. Dieses Modell zusammen mit der numerischen Lösung liefert eine Abschätzung, die für ebene Wellen und damit in guter Näherung in optischen Lichtwellenleitern gültig ist:

$$L_F \approx \frac{0.4}{1 - m/100} \sqrt{L_D L_{\text{NL}}} \\ \beta \approx 0.5 \sqrt{\frac{L_D}{L_{\text{NL}}}}, \quad (3.28)$$

wobei L_F die Länge ist, nach der $m\%$ des maximal möglichen Faktors β der spektralen Verbreiterung erreicht werden. Dabei sind $L_{NL} = z_{NL} = n_2 \omega_0 / (c I_{\max, z=0})$ und $L_D = \tau_{1/2}^2 / k''$. Möchte man mit Pulsen ein möglichst breites Spektrum erzeugen, so ist ein sinnvoller Wert etwa z.B. 95% der maximalen Verbreiterung, entsprechend $L_F \approx 8 \sqrt{L_D L_{NL}}$.

Ein Beispiel, das die spektrale Verbreiterung in einer Faser in unseren Experimenten beschreibt: Die in der Praxis in eine Ein-Moden-Faser eingekoppelte Leistung eines Femtosekunden-Lasers (Modell Mira 900, Coherent, Inc.) beträgt 200 mW. Bei einer Repetitionsrate von 75 MHz haben die Pulse eine Energie von ca. 2.7 nJ, was bei einer Halbwertsbreite von 73 fs einer Spitzenleistung von etwa 33 kW entspricht ($E = 2\tau_{1/2} P_{\max} / 1.76$ für einen Sech-Puls, s.u.). Bei einem Faserkern-Durchmesser von ca. 5 μm , entsprechend ungefähr 20 μm^2 Fläche, sind dies annähernd $1.6 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$. Mit einer nichtlinearen Brechzahl $n_2 \approx 2.7 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ für Quarzglas bei $\lambda = 800 \text{ nm}$ berechnet sich eine nichtlineare Länge $L_{NL} = \lambda / (2\pi n_2 I_{\max}) \approx 3 \text{ mm}$. Mit $k'' \approx 360 \text{ fs}^2/\text{cm}$ bei 800 nm ergibt sich $L_D \approx 14.8 \text{ cm}$, also $\sqrt{L_D L_{NL}} \approx 4.5 \text{ cm}$. Nach ca. 36 cm Faserlänge hat das Spektrum 95% seiner Maximalbreite erreicht, die 3.5-fache Breite des Anfangsspektrums. Eine weitere spektrale Verbreiterung kann man erreichen, indem man dem Puls vor der Einkopplung in die Faser einen „down-chirp“ aufprägt. Dadurch kann man die effektive Länge, auf der Selbst-Phasenmodulation stattfindet, maximal verdoppeln.

Möchte man die Pulse nach Durchlaufen einer solchen Strecke wieder komprimieren, so ist es jedoch nicht sinnvoll, eine maximale spektrale Verbreiterung des Pulses herbeizuführen. Der chirp innerhalb des Pulses weicht dann weit von einem linearen chirp ab, diese Abweichung läßt sich bei der Kompression nicht mehr kompensieren. Mit Hilfe der numerischen Analyse [Die96, Tom84] kann man die entsprechende optimale Länge durch $L_F \approx 1.4 \sqrt{L_D L_{NL}}$ abschätzen, entsprechend einem möglichen Kompressionsfaktor $\beta \approx 0.37 \sqrt{L_D / L_{NL}}$.

Für negative Koeffizienten $k'' < 0$ läßt die nichtlineare Schrödingergleichung 3.23 stationäre Lösungen zu, sogenannte „Solitonen“. Diese können zum Beispiel in optischen Quarzglas-Fasern verwirklicht werden [Mol80], wo durch Lichtwellenleitung die Wellenfronten in guter Näherung eben sind, also transversale Beugungs- und (nichtlineare) Brechungseffekte vernachlässigt werden können. Für Wellenlängen größer als 1.27 μm ist für Quarzglas $k'' < 0$ (durch die geometrischen Wellenleiter-Effekte ist dieser Punkt in Fasern zu längeren Wellenlängen, zu $\lambda = 1.312 \mu\text{m}$, verschoben). Hier können einzelne Pulse mit stabiler oder sich periodisch wiederholender Pulsform propagieren, wenn sich die beiden Effekte der Erzeugung eines „down-chirps“ durch negative Dispersion und der Erzeugung eines „up-chirps“ durch Selbst-Phasenmodulation die Waage halten. Die erzeugten blauen Frequenzen am abfallenden Ende des Pulses holen durch Dispersion die niederen Frequenzen am vorderen Pulsanstieg ein: Der Puls läuft nicht auseinander. Die exakte Balance dieser zwei Effekte kann natürlich nur unter besonderen Puls- und Faser-Parametern stattfinden. Eine einfache Gleichsetzung der beiden Effekte für den chirp im Zentrum eines Gauss-Pulses liefert schon eine Bedingung an die

Puls- form	Intensitäts- profil $I(t)$	$\tau_{1/2}$ (FWHM)	spektrale In- tensität $S(\omega)$	$\Delta\omega$ (FWHM)	$\tau_{1/2}\Delta\nu$
Gauss	$I_0 e^{-2(t/\tau)^2}$	$\sqrt{2\ln 2}\tau$ $= 1.177\tau$	$S_0 e^{-(\omega\tau)^2/2}$	$2.355/\tau$	0.441
Sech	$I_0 \operatorname{sech}^2(\frac{t}{\tau})$	$2\ln(\sqrt{2} + 1)\tau$ $= 1.763\tau$	$S_0 \operatorname{sech}^2(\frac{\pi\omega\tau}{2})$	$1.122/\tau$	0.315

Tabelle 3.4: Eigenschaften der beiden hier benutzten Pulsformen, gültig für bandbreitenbegrenzte Pulse. Angegeben sind die zeitlichen und spektralen Intensitäten und jeweils deren volle Halbwertsbreiten, sowie das Pulslänge-Bandbreite-Produkt. Die integrale Intensität $\int_{-\infty}^{\infty} I(t) dt$ ist $\sqrt{\pi/2} I_0 \tau = 1.064 I_0 \tau_{1/2}$ für einen Gauss-Puls und $2 I_0 \tau = 1.135 I_0 \tau_{1/2}$ für einen Sech-Puls.

Pulsparameter und auch die richtige Größenordnung: $z_D = z_{NL}$, und damit:

$$I_{\max} \tau^2 = \frac{2n|k''|}{k_0 n_2}. \quad (3.29)$$

Die Pulsintensität verhält sich also reziprok zum Quadrat der Pulslänge.

Tatsächlich haben die stationären Lösungen der Gleichung die in Abbildung 3.4 gezeigte Form eines Secans hyperbolicus ($\operatorname{sech}(x) = 1/\cosh(x) = 2/(e^x + e^{-x})$):

$$A(z, t) = A_0 \operatorname{sech}(t/\tau) e^{iz/(4z_D)}, \quad (3.30)$$

wobei hier $I_0 \tau^2 = n|k''|/(k_0 n_2)$ durch die Bedingung $z_{NL} = 2z_D$ gegeben ist⁵.

Auch Pulse einer anfänglichen Form $|A(z=0, t)| = N A_0 \operatorname{sech}(t/\tau)$ mit einer ganzen Zahl N , wobei $I_0 = \frac{1}{2} n \varepsilon_0 c A_0^2$ wie oben definiert mit τ zusammenhängt, führen zu periodisch wiederkehrenden (Periodenlänge πz_D), nicht auseinanderfließenden Pulsformen, den Solitonen höherer Ordnung.

In der Realität entwickelt sich aus einem chirp-freien Puls ausreichend hoher Amplitude ($N > 1$) ein Soliton nach einer anfänglichen Phase, in der sich die Pulsdauer (durch spektrale Verbreiterung und Pulskompression) wesentlich verkürzt. Je höher dabei die anfängliche Intensität war, desto kürzer und spektral breiter wird das letztlich gebildete Soliton und desto höher seine Ordnung N . Dieses Verhalten wurde experimentell und theoretisch für Picosekundenpulse in [Mol83] untersucht.

⁵Übernimmt man die gegebene Definition für $z_D = \tau^2/(2|k''|)$ für die Sech-Pulse, so ist z_D bei gleicher Intensitäts-Halbwertsbreite aufgrund des unterschiedlichen $\tau_{1/2}/\tau$ -Verhältnisses etwa halb so groß wie bei Gauss-Pulsen.

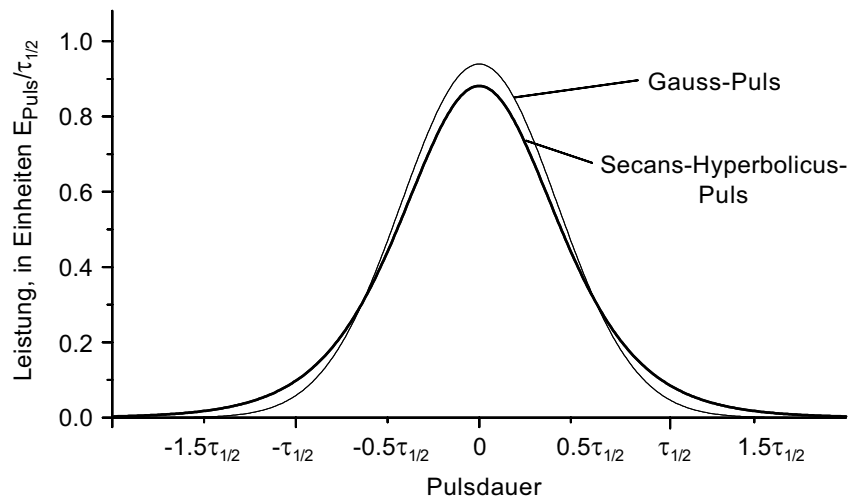


Fig. 3.4: Intensitätsprofil eines Secans-Hyperbolicus-Pulses im Vergleich zu einem Gauss-Puls gleicher Gesamtenergie E_{Puls} und gleicher Intensitäts-Halbwertsbreite $\tau_{1/2}$.

3.6 Nichtlineare Selbst-Fokussierung: optischer Kerr-Effekt

Der nichtlineare Anteil des Brechungsindex hat noch einen weiteren wichtigen Effekt zur Folge, der die transversalen Eigenschaften eines Laserstrahls hoher Intensität verändert, den optischen Kerr-Effekt. Er ist entscheidend für die Pulsformung und Aufrechterhaltung des Pulsbetriebes in einem mit „Kerr-Linse modengekoppelten Laser“ (engl. Kerr-lens mode-locked laser, abgekürzt KLM-laser) verantwortlich.

Die bisherigen Betrachtungen haben die transversalen Strahleigenschaften außer Acht gelassen und beschränkten sich auf (in xy-Richtung) ebene Wellen mit z- und t-Abhängigkeit. Diese Vereinfachung ist nur in schwach fokussierten Strahlen, bzw. geführten Strahlen in optischen Lichtwellenleitern eine gute Näherung. In den meisten praktischen Fällen hat man es annähernd mit einem Gaußschen-Strahl, der TEM₀₀-Grundmode eines optischen Resonators, zu tun. Seine Intensitätsverteilung wird beschrieben durch

$$\begin{aligned}
 I(r, z) &= I_0 \frac{w_0^2}{w^2(z)} e^{-2r^2/w^2(z)}, \\
 w(z) &= w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}, \\
 z_R &= \frac{\pi n w_0^2}{\lambda}.
 \end{aligned} \tag{3.31}$$

Dabei bedeutet I_0 die Intensität auf der Strahlachse ($r = 0$) in der Bündeltaile $z = 0$, r den Abstand von der Strahlachse, $w(z)$ den $1/e^2$ -Strahlradius an der Stelle z , w_0 den Radius in der

Strahltille und z_R die Rayleigh-Länge, nach der sich der Strahlradius, ausgehend von der Tille, um $\sqrt{2}$ vergrößert hat. Die Leistung des Strahls berechnet sich aus der Maximalintensität gemäß $P = \frac{\pi}{2} w_0^2 I_0$. Der nichtlineare Brechungsindex $n_{\text{tot}} = n + n_2 I$ folgt exakt dem Strahlprofil. Auf der Strahlachse ist der Brechungsindex am größten und fällt mit einem Gauss-Profil nach außen ab, es bildet sich also eine Linse, die das Auseinanderlaufen des Strahls aufgrund der Beugung teilweise (siehe Abbildung 3.5) oder ganz kompensiert oder den Strahl sogar fokussiert.

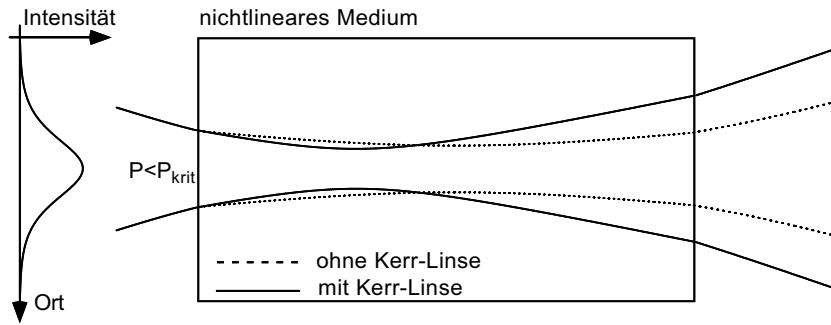


Fig. 3.5: *Selbst-Fokussierung: Ein intensiver Laserstrahl erhöht den Brechungsindex $n_{\text{tot}} = n + n_2 I$ proportional zur lokalen Intensität. Die entstandene „Kerr-Linse“ fokussiert den Strahl zusätzlich und ändert die Strahlparameter. Im Extremfall $P \geq P_{\text{krit}}$ tritt unter geeigneten Umständen sogar Führung des Strahls in einem selbstinduzierten Wellenleiter auf.*

Dieser Aspekt kann einfach in der nichtlinearen Schrödingergleichung (Gl. 3.23) dadurch berücksichtigt werden, daß unter der Annahme schwacher z-Abhängigkeit des Strahlprofils die bisher gemachten Näherungen gültig bleiben und zusätzlich die transversalen Ableitungen

$$\nabla_T^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$$

aus Gleichung 3.1 übernommen werden. Somit lautet die vollständige Gleichung:

$$\left(\nabla_T^2 + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial z} - k_0 k'' \frac{\partial^2}{\partial t^2} + 2k_0^2 \frac{n_{\text{NL}}}{n} |A(\mathbf{r}, t)|^2 \right) A(\mathbf{r}, t) = 0 . \quad (3.32)$$

Sei hier wieder die Dispersion vernachlässigt ($k'' = 0$) und ein Strahl betrachtet, der exakt bei seiner Strahltille in das Medium eintritt und danach seinen Strahlradius w_0 beibehält. Für diesen Fall ist $\partial A / \partial z = 0$, und der erste Term (Beugung) und letzte Term (Selbst-Fokussierung) der Gleichung müssen sich kompensieren. Mit $A(r, z = 0) = A_0 e^{-r^2/w_0^2}$ ergibt sich bei $r = 0$:

$$4/w_0^2 = 2k_0^2 \frac{n_{\text{NL}}}{n} A_0^2 . \quad (3.33)$$

Da die Leistung des gesamten Strahls sich aus der Maximalintensität gemäß $P = \frac{\pi}{2} w_0^2 I_0$ berechnet, kann man die Bedingung schreiben:

$$P_{\text{krit}} = \frac{\lambda^2}{4\pi n_2 n} . \quad (3.34)$$

Ob eine Selbst-Fokussierung stattfindet, hängt also nicht von der Größe der Strahlteile, sondern nur von der (momentanen) Leistung des Strahls ab. Für $P > P_{\text{krit}}$ (in Titan:Saphir etwa 2.6 MW [Spi94]) kann man eine charakteristische Länge definieren⁶, nach der der Strahl seinen Fokus erreicht hat:

$$z_{\text{SF}} = \frac{z_R}{\sqrt{P/P_{\text{krit}} - 1}} . \quad (3.35)$$

Das weitere Verhalten eines Strahls mit $P > P_{\text{krit}}$ hängt von den Nichtlinearitäten höherer Ordnung ab, die bei den auftretenden hohen Intensitäten ins Spiel kommen. Je nach Vorzeichen und Stärke kann die Strahlform instabil werden oder eine wellenleiterähnliche stabile Führung des Lichtfeldes eintreten, wobei sogar die Zerstörschwelle des Materials überschritten werden kann.

Da die benutzte Differentialgleichung unter der Annahme instantaner nichtlinearer Antwort zeitunabhängig ist, gilt das Ergebnis genauso bei Pulsen mit der momentanen Leistung $P(t)$; t ist ja die retardierte Zeit, d. h. $t = 0$ bezeichnet das Pulsmaximum für alle z -Werte. Beim Durchgang durch ein nichtlineares Medium ist also der Strahlverlauf für die Pulsflanken ein anderer als für das Pulsmaximum. Auf diesem Effekt beruht die Modenkopplung durch Kerr-Linse.

⁶Die angegebenen Definitionen für P_{krit} und die folgende Formel zur approximativen Berechnung von z_{SF} sind in der Literatur uneinheitlich. Die hier gewählte Darstellung folgt [Yar89, Akh92]. Eine bessere numerische Approximation findet sich in [Die96, Akh92].

Kapitel 4

Elemente der Frequenzmessung mit modengekoppelten Lasern

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit den experimentellen Aspekten der Frequenzmessung mit modengekoppelten Lasern. Nach einem ersten Abschnitt über die Funktionsweise eines modengekoppelten Femtosekundenlasers beschäftigt sich der hauptsächliche Teil des Kapitels mit den in dieser Arbeit entwickelten Techniken, die notwendig sind, um den Femtosekundenlaser zu präzisen Frequenzmessungen einzusetzen, und die in den Experimenten der folgenden Kapitel benutzt wurden. Der letzte Abschnitt stellt die experimentelle Überprüfung der Eigenschaften vor, auf deren Basis der Modenkamm als Frequenz-Meßinstrument benutzt werden kann: Die gleichmäßige Verteilung der Moden über ein Intervall von 20 THz und die Gleichheit von Pulswiederholrate und Modenabstand konnten im Rahmen der experimentellen Auflösung von 3.0×10^{-17} bzw. 6.0×10^{-16} nachgewiesen werden. Die den Femtosekundenlaser¹ direkt betreffenden Techniken dieses Kapitels wurden in [Rei99], die Ergebnisse der Experimente zur Integrität des Frequenzkamms in [Ude99b] veröffentlicht.

4.1 Funktionsweise eines modengekoppelten Lasers

Ein modengekoppelter Laser erzeugt die von ihm emittierten Pulse nicht als zeitlich unabhängige Einzel-Pulse sondern im quasi-kontinuierlichen Betrieb durch Interferenz einer Vielzahl aktiver Lasermodes mit definierter Phasenbeziehung. Örtlich eng begrenzt interferieren diese konstruktiv zu einem kurzen Puls hoher Intensität, der kontinuierlich im Laser-Resonator

¹Bei sämtlichen hier vorgestellten Experimenten wurde ein Laser Modell Mira 900 (Coherent, Inc.) mit einer Pulsdauer von 73 fs und einer Pulsrepetitionfrequenz von 75 MHz verwendet.

umläuft und von dem während des Umlaufs ein Teil des Lichts als kohärenter Pulszug ausgekoppelt wird. Eine solche Kopplung der Lasermode lässt sich beispielsweise dadurch erreichen, daß ein elektro- oder akusto-optischer Schalter die Resonatorgüte periodisch mit der Resonatorumlauffrequenz moduliert und nur ein Wellenpaket passieren läßt, welches zur Zeit maximaler Transmission den Schalter erreicht. Mit solchen aktiv modengekoppelten Lasern lassen sich allerdings keine genügend kurzen Pulse im Femtosekundenbereich erzeugen, die eine für Frequenzmessungen interessante spektrale Bandbreite erreichen. Hierfür kommen nur passiv modengekoppelte Laser mit sättigbaren Absorbern oder Modenkopplung mit Hilfe einer Kerr-Linse (engl. kerr lens mode-locking, KLM) in Frage. Anhand eines mit Kerr-Linse modengekoppelten Titan:Saphir-Lasers, mit dem die hier vorgestellten Experimente durchgeführt wurden, soll das Prinzip der Modenkopplung erläutert werden.

Die dabei wichtigen dispersiven und nichtlinearen Effekte und optischen Elemente sind in Kapitel 3 diskutiert. Eine ausführliche Darstellung über modengekoppelte Femtosekundenlaser findet man in [Rul98, Die96].

In einem mit Kerr-Linse modengekoppelten Laser ist der Resonator so konstruiert, daß Licht im Resonator geringere Verluste erleidet, wenn von den hohen Spitzenintensitäten eines kurzen Pulses eine Kerr-Linse im laseraktiven Material gebildet wird. Dabei können in einem unserem vergleichbaren Laser Spitzenleistungen von etwa 1.5 MW erreicht werden, 5 bis 6 Größenordnung höher als im cw-Betrieb! Da diese in der Nähe der für den Kerr-Effekt in Ti:Saphir kritischen Leistung von ca. 2.6 MW [Spi94] liegen, wird verständlich, daß die Selbst-Fokussierung hier eine wesentliche Rolle spielt.

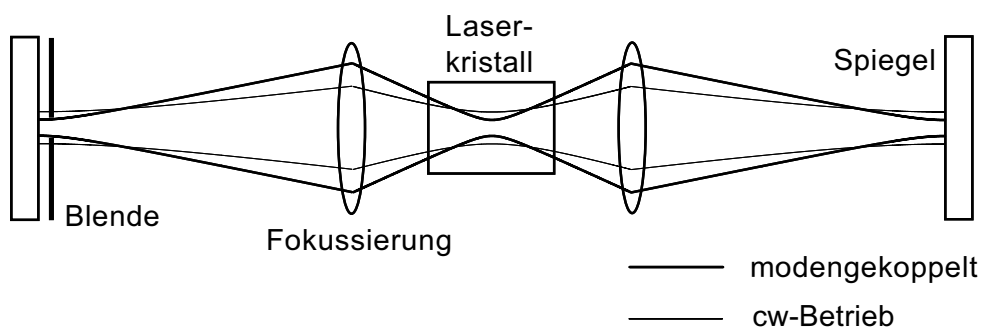


Fig. 4.1: Vereinfachte Darstellung eines Laserresonators zur Modenkopplung mit Kerr-Linse: Im modengekoppelten Betrieb auftretende Spitzenintensitäten bewirken durch Selbst-Fokussierung des Strahls im laseraktiven Material einen veränderten Strahlengang gegenüber dem cw-Betrieb. Eine Blende an geeigneter Stelle fügt höhere Verluste für cw-Moden ein und bevorzugt so den modengekoppelten Betrieb.

Eine solche Resonatoranordnung ist schematisch in Abbildung 4.1 dargestellt. Der Resonator ist so konstruiert, daß er im cw-Betrieb instabil ist. Dies kann zum Beispiel durch Modenkopplung mit „harter Blende“ (engl. hard aperture) erreicht werden: Dabei schneidet eine Blende an geeigneter Stelle im Strahlengang in das Strahlprofil der cw-Moden ein und verursacht hohe Verluste. Erst eine durch nichtlineare Selbst-Fokussierung (Kerr-Effekt, siehe Kapitel 3) gebildete zusätzliche Linse im Strahlengang des Resonators ermöglicht eine stabile Resonatorgeometrie, die kontinuierlichen Pulsbetrieb zuläßt.

Eine andere oder zusätzliche Möglichkeit, den Pulsbetrieb zu bevorzugen, besteht darin, durch starke Fokussierung des Pumplaserstrahls das Inversionsvolumen im laseraktiven Material so klein zu gestalten, daß der Überlapp mit einer cw-Mode schlecht ist, aber für das kleinere Volumen der selbst-fokussierten Mode optimal wird. Man spricht dann von „Gewinn-Führung“ (engl. gain guiding) oder Modenkopplung mit weicher Blende (engl. soft aperture).

Die Kerr-Linse wirkt in diesem Fall wie ein schneller Schalter, der hohe Lichtensitäten passieren läßt, aber niedrige Intensitäten unterdrückt. Auf diese Weise kann ein Puls geformt werden: Der Kerr-Effekt sorgt dafür, daß sowohl die ansteigende als auch die abfallende Flanke steiler wird und die Pulsspitze maximale Resonatorgüte und Laserverstärkung erfährt (Selbst-Amplitudenmodulation des Pulses). Mit diesem Mechanismus kann die gesamte Energie des Lichtfeldes in einem kurzen Puls konzentriert werden, der quasi-stationär im Resonator umläuft.

Als Grundvoraussetzung zur Erzeugung von Pulsen im Femtosekundenbereich muß natürlich die Verstärkungsbandbreite des Lasermediums groß genug sein, um das gesamte Pulsspektrum zu verstärken (Pulslänge-Bandbreite-Produkt bei bandbreitenbegrenzten Sech-Pulsen: $\tau_{1/2} \Delta\nu = 0.315$, bei Pulsen von z. B. 70 fs Halbwertsbreite ist $\Delta\nu = 4.5$ THz, entsprechend ca. 11 nm bei $\lambda = 850$ nm.). Bei Ti:Saphir mit einer Verstärkungsbandbreite von ca. 670 nm bis 1070 nm ist dies für den nah-infraroten Bereich in idealer Weise erfüllt, so daß mit Ti:Saphir auch die kürzesten direkt von einem Laseroszillator erzeugten Pulse von < 5.4 fs Länge demonstriert werden konnten [Mor99].

Als Mechanismus zur Erzeugung und Formung ultrakurzer Pulse ist die Selbst-Amplitudenmodulation durch eine Kerr-Linse unverzichtbar. Um jedoch in den Bereich von Femtosekundenpulsen vorzustößen, reicht dieser Effekt alleine nicht aus. Die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) der Elemente im Resonator (vergleiche Kapitel 3) bewirkt ein beständiges Auseinanderfließen der Pulse, die dem Aufsteilen der Pulsflanken durch Selbst-Amplitudenmodulation entgegenwirkt. Dabei können Pulslängen von einigen Pikosekunden Dauer erreicht werden, die ausgekoppelten Pulse weisen zudem einen starken „up-chirp“ auf, d. h. Zunahme der Momentanfrequenz während der Pulsdauer (vgl. Kapitel 3). Um diesem Effekt entgegenzuwirken, müssen in den Resonator Elemente negativer GVD eingebracht werden, wie z. B. ein Prismenkompressor oder/und dispersive Spiegel [Szi94]. Eine mögliche Resonatoran-

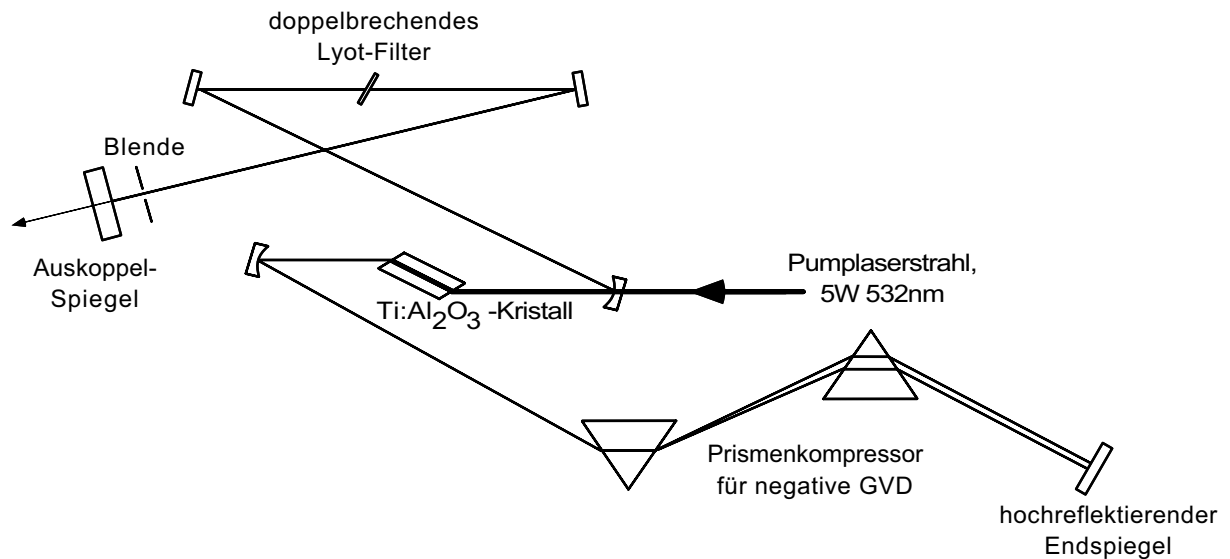


Fig. 4.2: Schematischer Aufbau eines mit Kerr-Linse modengekoppelten Festkörperlaser, ähnlich dem in den Experimenten verwendeten Laser Modell Mira 900 (Coherent Inc.). Der Resonator ist ein linearer Resonator, cw-Moden erleiden durch eine Blende hohe Verluste. Die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) des dispersiven Materials im Resonator wird mit einem prismatischen Kompressor kompensiert.

ordnung, die der Laser unserer Experimente verwendet, ist in Abbildung 4.2 gezeigt.

Sobald die positive Gruppengeschwindigkeitsdispersion des Materials kompensiert ist, oder kleine negative Werte für D_2 erreicht sind, sorgt ein weiterer nichtlinearer Effekt für eine zusätzliche Verkürzung der Pulse, die Selbst-Phasenmodulation von Pulsen hoher Intensität im Lasermedium. Der durch Selbst-Phasenmodulation erzeugte „up-chirp“ wird durch negative GVD wieder kompensiert, wobei die bei der Selbstphasenmodulation generierten neuen Frequenzkomponenten zu einer Verkürzung des Pulses führen. In Abschnitt 3.5 wird das Zusammenspiel zwischen negativer GVD und Selbstphasenmodulation diskutiert. Wie in einem kontinuierlichen Medium führt die den Laser beschreibende Gleichung näherungsweise auf eine nichtlineare Schrödingergleichung, die Solitonen-ähnliche Lösungen hat (siehe z. B. [Her94]).

Tatsächlich haben die von einem mit Kerr-Linse modengekoppelten Laser emittierten Pulse in guter Näherung die Form eines Secans-Hyperbolicus-Pulses (siehe Abbildung 3.4). Im Gegensatz zu Solitonen ist hier jedoch die Pulsformung nicht kontinuierlich. Der Puls verändert seine Form beim Durchlaufen der optischen Elemente ständig, wobei diese sich nach jedem Umlauf wiederholt. Auch aufgrund der hier völlig vernachlässigten Effekte der (periodischen) Verluste und Laserverstärkung ist die Analogie zu Solitonen unvollständig, trotzdem lassen sich durch sie schon die wichtigsten Mechanismen verstehen.

Mit diesen modengekoppelten Lasern lassen sich heute routinemäßig Pulse von 70 fs erreichen, durch Einsatz dispersiver Spiegel sind sogar schon Laser mit Pulsdauern von weniger als 20 fs kommerziell erhältlich. Eine Grenze für erreichbare Pulsdauern bildet in erster Linie die Dispersion höherer Ordnung, die schwer gleichzeitig mit der GVD kompensiert werden kann. Durch geschickte Kombination von dispersiven Spiegeln kann man auch hier noch einen Teil der unerwünschten Verzerrungen der Pulsform und -phase verhindern, so daß Pulslängen von bis zu 5.4 fs mit einer spektralen Bandbreite von mehr als 400 nm erreicht werden konnten [Mor99].

Einen guten Überblick über Details der Funktionsweise und der die Pulslänge bestimmenden Parameter breitbandiger Femtosekunden-Laser bietet [Spi94]. Details für das Design eines Laserresonators für Modenkopplung durch Kerr-Linse mit Hilfe des ABCD-Matrizen-Formalismus findet man z. B. in [Cer94].

Im Hinblick auf die Betrachtung der Modenkopplung im Frequenzbild bedeutet die möglichst gute Kompensation der Dispersionsterme $k''(\omega)$, $k'''(\omega)$ etc., daß die gekoppelten Moden des aktiven Laserresonators über einen weiten Frequenzbereich sehr genau gleichmäßigen Abstand haben, da die entsprechenden Terme in Gleichung 2.1 verschwinden. Dabei muß allerdings außer dem linearen Brechungsindex auch der nichtlineare Term berücksichtigt werden, so daß man hier eigentlich von einem effektiven $k''_{\text{eff}} = 0$ sprechen muß, bei dem sich GVD und Selbst-Phasenmodulation kompensieren.

4.2 Stabilisierung von Repetitionsfrequenz und Absolutfrequenz des Femtosekundenkamms

Die Diskussion der Eigenschaften des Modenkamms eines Femtosekundenlasers in Kapitel 2 ging auf einen für hochpräzise Messungen großer optischer Frequenzlücken wesentlichen Aspekt noch nicht ein: die Stabilitätseigenschaften des Laserresonators und deren Kontrolle. Eine elektronische Stabilisierung des Resonators ist dabei notwendig: Die Überbrückung einer Frequenzlücke mit etwa 10^5 bis 10^6 Moden des Frequenzkamms bedeutet effektiv eine Multiplikation der Pulsrepetitionsrate mit diesem Faktor. Die relative Genauigkeit in der Bestimmung des Frequenzintervalls ist daher durch die relative Unsicherheit der Pulsrepetitionsrate gegeben. Als Beispiel würde eine angestrebte Genauigkeit von 10^{-12} (45 Hz bei dem im Experiment überbrückten Intervall von 45 THz) die Kenntnis der Repetitionsrate (ca. 76 MHz) auf besser als 100 μHz voraussetzen. Typische Driften eines unstabilisierten Resonators (im Bereich von 10^{-7} pro Sekunde) und Instabilitäten (z. B. durch Akustik) lassen die Messung mit einer solchen Genauigkeit nicht zu. Stabilisiert man jedoch die Repetitionsrate mit Hilfe einer Phasenstabilisierung auf eine Radiofrequenz-Referenz, so läßt sich bei genügend langer

Meßzeit $t_{\text{Meß}}$ (typischerweise einige 10 s) im Zeitmittel der durch die Stabilisierung verursachte Frequenzfehler ($\propto 1/t_{\text{Meß}}$) gegenüber der Unsicherheit der Referenz vernachlässigen.

Diese Stabilisierung kann leicht durch Regelung der Resonatorlänge mit einem (kommerziell erhältlichen) auf einer Piezokeramik angebrachten Umlenkspiegel erreicht werden. Für das Fehlersignal kann direkt ein Teil des Laserlichts verwendet werden, dessen Intensitätsmodulation von einer schnellen Photodiode detektiert wird. Eine fehlerlose Phasenstabilisierung ist aufgrund eines hervorragenden Signal-zu-Rausch-Verhältnisses von 60 dB in 400 kHz Bandbreite gewährleistet.

Ein kritischer Punkt bei der Multiplikation der stabilisierten Repetitionsfrequenz auf die Größe des optischen Intervalls ist jedoch die Multiplikation des Phasenrauschens. Eine bekannte Tatsache ist, daß bei einer Vervielfachung der Frequenz mit einem Faktor N die Gesamt-Intensität des Phasenrauschens mit N^2 ansteigt [Wal75]. Das Phasenrauschen der von einem Quarz-Oszillator erzeugten 10 MHz-Referenzfrequenz des Synthesizers, auf die die Pulsrepetitionsrate f_r stabilisiert ist, würde demnach um 13 Größenordnungen ansteigen, wenn ein Intervall von 45 THz vermessen wird! Man würde erwarten, daß sich bei diesen Multiplikationsfaktoren die Schwebungssignale der cw-Laser mit den Moden des Kamms nicht mehr vom Rauschhintergrund trennen lassen („carrier collapse“, siehe z. B. die Abbildung auf S. 162 in [Tel96]).

Wir haben jedoch einen Parameterbereich gefunden, bei dem erstaunlicherweise das Signal-zu-Rausch-Verhältnis bei weitem für eine korrekte Detektion der Schwebungsfrequenzen ausreicht (> 30 dB in 400 kHz Bandbreite): Dies wird erreicht, indem die Regelbandbreite f_B für die Stabilisierung von f_r möglichst niedrig (etwa < 500 Hz) gewählt wird. Alle Rauschkomponenten des Synthesizers mit $f > f_B$ werden dabei herausgefiltert und nicht weiter multipliziert. Tatsächlich haben wir auch keine Verbesserung der Rauscheigenschaften der einzelnen Moden feststellen können, als der Synthesizer durch einen DRO, einen „dielektrischen Resonator-Oszillator“ (Modell XPDRO-6313, CTI Communication Techniques) mit hoher Kurzzeit-Stabilität ersetzt wurde. Es konnte bei diesem auf eine externe Referenz phasenstabilisierten DRO sogar eine geringe Drift der Phasenstabilisierung von 2×10^{-14} pro Sekunde (100 mHz bei einem Intervall von 4 THz) beobachtet werden.

Offenbar ist die intrinsische Kurzzeit-Stabilität des Femtosekundenlasers für kürzere Zeiten als etwa 1 ms weit besser als die Stabilität von Quarzoszillatoren und sogar DROs, er läßt dadurch die direkte Multiplikation von Frequenzen mit einem Faktor von mehr als 10^6 zu. Möglicherweise stellt hier der Femtosekundenlaser sogar eine neuartige Quelle zur Erzeugung von Radiofrequenzen höchster Stabilität dar! Um diesen Effekt mit einer möglichst großen „Hebelwirkung“ auszunutzen, wurde nicht die Pulsrepetitionsrate selbst, sondern ihre 100. bzw. 200. Harmonische phasenstabilisiert. Dadurch konnten zusätzliche bei der Detektion und Stabilisierung eingeführte Rauschkomponenten um einen Faktor 100^2 bzw. 200^2 reduziert werden. Zusätz-

lich stellt der intrinsisch stabile Resonator einen Filter für die Moden dar und verhindert dadurch, daß hochfrequente Rauschkomponenten durch den Frequenzkamm propagieren können (dies wurde schon von M. Kourogi bei Experimenten mit seinem optischen Frequenzkamm-Generator beobachtet [Kou]).

Eine konsequente Untersuchung und ein vollständiges Verständnis der Stabilitätseigenschaften des Femtosekundenlasers und der Rauscheigenschaften des Modenkamms im Zusammenhang mit der Multiplikation von Radiofrequenzen stehen noch aus und werden sicherlich überraschende Eigenschaften modengekoppelter Laser aufdecken.

Bisher wurde nur die Stabilisierung eines Freiheitsgrades des Modenkamms diskutiert: des Modenabstands. Der Kamm besitzt jedoch zwei unabhängige Freiheitsgrade: Die Frequenz einer einzelnen Mode f_n ist gegeben durch $f_n = nf_r + f_0 = (n + \Delta\varphi/2\pi)f_r$ (Gleichung 2.5), mit der Pulsrepetitionsfrequenz f_r , der Phasenschlupffrequenz f_0 und der Puls-zu-Puls-Phasenverschiebung $\Delta\varphi$. In den meisten Anwendungen möchte man *sowohl* die Schwebungsfrequenz einer bestimmten Mode mit einem anderen Laser *als auch* die Pulsrepetitionsrate *gleichzeitig* stabilisieren. Dazu ist es notwendig, unabhängig voneinander die Phasengeschwindigkeit dieser Mode und die Gruppengeschwindigkeit des Pulses zu kontrollieren. Eine Variation der Resonatorlänge verändert jedoch sowohl die Wellenlänge der Mode als auch die Umlaufzeit des Pulses. Bei einer Längenänderung wird kein zusätzliches dispersives Material eingefügt, auf dieser kurzen Strecke ist $v_g = v_p$, d. h. $\Delta\varphi$ wird nicht verändert. Daher ist (nach Gleichung 2.5) $\Delta f_n/f_n = \Delta f_r/f_r = -\Delta L/L$. Der Frequenzkamm wird dadurch im wesentlichen als Ganzes verschoben und auch ein wenig „gespreizt“. Dieses Stellglied eignet sich daher gut für die Stabilisierung der Absolutfrequenz einer speziellen Mode, wenn eine andere Regelung gleichzeitig die Repetitionsrate stabilisiert.

Für diesen zweiten Regelkreis haben wir eine elegante Methode gefunden, die uns ein modengekoppelter Laser mit einem internen Prismenpaar zur Dispersionskompensation zur Verfügung stellt, und die es erlaubt, die Pulsrepetitionsfrequenz unabhängig zu regeln. Wie in Abbildung 4.3 gezeigt, kann man den Endspiegel innerhalb des Prismenkompressors mit Hilfe einer zu diesem Zweck in den Spiegelhalter eingebauten Piezokeramik verkippen. In diesem Abschnitt sind die spektralen Komponenten des Pulses räumlich getrennt. Minimales Verkippen des Spiegels dejustiert den Laserresonator nur unwesentlich, ändert jedoch die Weglänge der Spektralkomponenten linear mit dem Abstand zum Drehpunkt: $\Delta z(\omega) = \rho(\omega - \omega_0) \tan \vartheta \approx \vartheta \rho(\omega - \omega_0)$, wobei ϑ der Kippwinkel und ω_0 die Frequenz der Komponente am Drehpunkt ist; die Konstante ρ beschreibt die räumliche Trennung der Spektralkomponenten. Beschreibt man den Puls (wie in Kapitel 3) durch Einhüllende und Trägerwelle als Realteil von $E(z, t) = A(z, t)e^{i(k_0 z - \omega_0 t)}$, so muß in der Spektraldarstellung

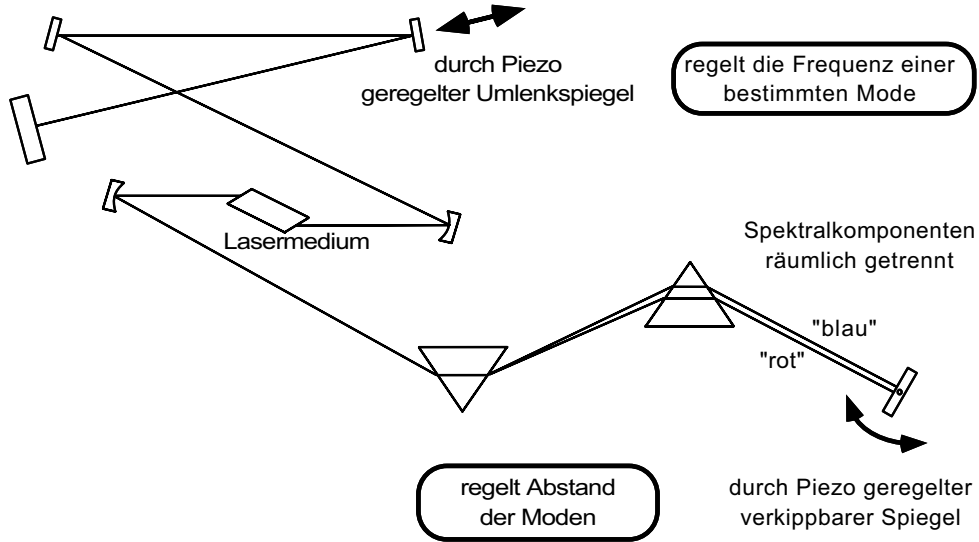


Fig. 4.3: Gleichzeitige Stabilisierung der beiden Parameter des Frequenzkamms, der Pulsrepetitionsrate und der Frequenz einer einzelnen Mode. Schnelle Regelung der Resonatorlänge stabilisiert die Frequenz einer bestimmten Mode. Langsameres Verkippen des Endspiegels ändert währenddessen die Pulsrepetitionsrate.

$$E(z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{A}(z, \omega - \omega_0) e^{i(k_0 z - \omega t)} d\omega \quad (4.1)$$

die Ortskoordinate in z durch $z + \vartheta \rho \Omega$ ersetzt werden (mit $\Omega = \omega - \omega_0$). Dadurch erhält man²

$$\begin{aligned} E(z, t) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{A}(z, \Omega) e^{i(k_0(z + \vartheta \rho \Omega) - \omega t)} d\omega \\ &= e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{A}(z, \Omega) e^{-i(t - k_0 \vartheta \rho) \Omega} d\Omega \\ &= A(z, t - \omega_0 \vartheta \rho / c) e^{i(k_0 z - \omega_0 t)}. \end{aligned} \quad (4.2)$$

Durch diese in $(\omega - \omega_0)$ lineare Weglängenänderung wird somit nur die *Einhüllende* des Pulses zeitlich proportional zum Kippwinkel ϑ verzögert, während die Verkipfung die am Drehpunkt reflektierte Frequenzkomponente unbeeinflusst läßt. Ein ähnliches Verfahren wurde vorher schon einmal in einer schnellen optischen Verzögerungs-Strecke benutzt [Kwo93].

Eine Verkipfung des Spiegels ändert also nur die Pulsrepetitionsrate f_r , d. h. den Abstand der Moden des Frequenzkamms, während die Frequenz einer speziellen Mode f_n am Drehpunkt

²Zur einfacheren Rechnung sei in sehr guter Näherung der Drehpunkt bei der Trägerfrequenz ω_0 angenommen.

unverändert bleibt. Idealerweise wäre dies die Mode, die gleichzeitig mit Hilfe der Längenregelung des Resonators in ihrer Absolutfrequenz phasenstabilisiert wird. In diesem Fall würde die Regelung von f_r die Modenfrequenz f_n nicht beeinflussen. Die Regelung von f_n jedoch beeinflusst immer noch f_r .

In der Praxis mit unserem kommerziellen Lasersystem hat sich gezeigt, daß diese Methode gut funktioniert, wenn die Resonatorlänge mit einer möglichst hohen Bandbreite (etwa 10 KHz) und die Repetitionsrate durch Verkippen des Endspiegels mit einer niedrigen Bandbreite geregelt wird³. Es hat sich auch herausgestellt, daß die Position des Drehpunktes am Spiegel nicht kritisch ist und sogar außerhalb des Spiegels liegen darf.

Um die Phase der Schwebung einer speziellen Mode mit einem cw-Laser — in unseren Experimenten einer Laserdiode — zu stabilisieren, ist erfahrungsgemäß eine wesentlich höhere Bandbreite als 10 kHz notwendig. Um diese zu reduzieren, müssen größere momentane Phasenabweichungen vom Sollwert erlaubt sein, ohne daß der Fangbereich der Regelung verlassen wird. Dies wurde in unseren Experimenten dadurch erreicht, daß ein 1:128-Frequenzteiler am Eingang des Regelkreises die phasenstabilisierte Schwebungsfrequenz — und damit auch die Phasenabweichungen — durch 128 dividierte und gleichzeitig ein digitaler Phasenregelkreis mit einem großen Fangbereich ($\pm 32\pi$) eingesetzt wurde [Pre95a]. Eine höhere Bandbreite dieser Regelung ließe sich prinzipiell auch mit einem resonatorinternen (wenn die zusätzlich eingefügte GVD entsprechend kompensiert wird) oder -externen elektro-optischen Modulator erreichen.

Zusammen mit der Stabilisierung der Repetitionsrate, die durch eine niedrige Bandbreite (< 500 Hz) die intrinsische Stabilität des Laserresonators ausnutzt, ist damit eine vollständige Stabilisierung des Modenkamms erreicht, mit dem nun hochpräzise Frequenzmessungen durchgeführt werden können.

4.3 Spektrale Verbreiterung der Pulse in Lichtwellenleitern

Die maximale Größe der Frequenzintervalle, die mit dem Frequenzkamm eines modengekoppelten Femtosekundenlasers vermessen werden können, wird in erster Linie durch die Breite des Spektrums des Lasers begrenzt. Dabei gilt der wohlbekannte Zusammenhang zwischen Pulsdauer und Bandbreite $\Delta t \Delta \nu \geq \text{const.}$ mit einer Konstante der Größenordnung 1. Diese untere Grenze hängt im konkreten Fall von Pulsform und Definition der Größen Δt und $\Delta \nu$ ab. Bei bandbreitenbegrenzten Secans Hyperbolicus-Pulsen gilt $\tau_{1/2} \Delta \nu = 0.315$ (siehe Tabelle 3.4).

In Abbildung 4.4 sind typische Spektren des in den Experimenten benutzten kommerziellen

³Ein Patent auf diese Methode ist angemeldet.

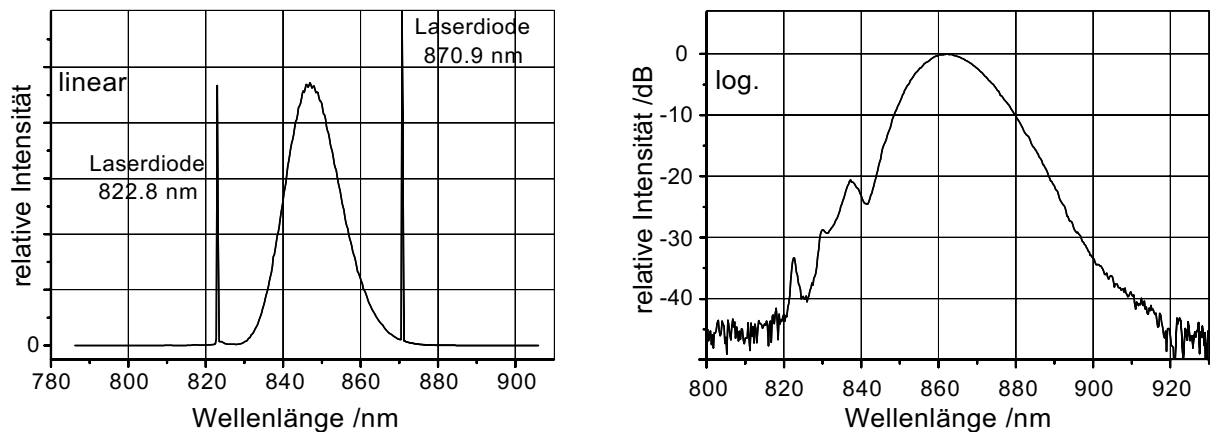


Fig. 4.4: Typische Spektren des Femtosekundenlasers Modell Mira 900, Coherent Inc. (Pulsdauer $\tau_{1/2} = 73$ fs), aufgenommen mit einem Gitter-Monochromator. Links: lineare Darstellung. Mit aufgenommen: Spektren von zwei Laserdioden, mit einem Abstand von 20.1 THz auf Moden des Frequenzkamms stabilisiert. Rechts: logarithmische Darstellung. Eine zuverlässige Phasenstabilisierung von Laserdioden auf Moden des Frequenzkamms ist noch bei -20 dB bzgl. der maximalen Intensität möglich. Die volle Halbwertsbreite beträgt 6.8 THz, entsprechend 16.5 nm, die Pulse sind etwa 1.5 mal bandbreitenbegrenzt.

Titan:Saphir-Femtosekundenlasers gezeigt. Mit einer spektralen Halbwertsbreite von 6.8 THz und einer (aus einer Messung der Autokorrelations-Spur, siehe z. B. [Die96]) bestimmten Pulsdauer von $\tau_{1/2} = 73$ fs sind die als Secans hyperbolicus angenommenen Pulse zeitlich 1.5 mal länger als durch die Bandbreite begrenzt möglich wäre. Die Breite von 6.8 THz ist jedoch kein gutes Maß für die tatsächlich für Frequenzmessungen nutzbare Bandbreite. In den Experimenten ließen sich zwei Laserdioden mit einem Abstand von 20 THz noch zuverlässig auf Moden des Kamms phasenstabilisieren, bei -20 dB (1/100) der maximalen spektralen Intensität (vergleiche Abbildung 4.4). Dabei wurden digitale Phasenregelkreise [Pre95a] bei einem Signal-zu-Rausch-Verhältnis des Schwebungssignals von mehr als 30 dB in 400 kHz Auflösungsbandbreite eingesetzt. Die Leistung in einer Mode bei -20 dB des Maximums kann auf etwa 40 nW abgeschätzt werden.

Innerhalb dieses Frequenzintervalls konnte die äquidistante Verteilung der Moden experimentell demonstriert werden (Kapitel 4.9). Damit steht schon mit einem kommerziellen System und einer moderaten Pulslänge von 73 fs ein mit einer Radiofrequenz eichbarer „Maßstab“ zur Vermessung von 20 THz-Intervallen zur Verfügung. Da die Bandbreite invers mit der Pulsdauer skaliert, sollte sich bei Verwendung von 10 fs-Systemen sofort ein um etwa einen Faktor 5 größeres Intervall überbrücken lassen können. So konnte schon ein Frequenzintervall von knapp unter 100 THz mit einem 10 fs-Laser überbrückt werden [Did00].

Jedoch läßt sich auch mit dem vorhandenen System das Spektrum des Frequenzkamms wesentlich verbreitern: durch effiziente Selbst-Phasenmodulation der Pulse in einer optischen Faser (siehe Abschnitt 3.4). Diese Methode ist weit verbreitet und wird meist zur weiteren Verkürzung der Pulsdauer bei ultrakurzen Pulsen in „Faserkompressoren“ angewendet [Bal97]. Aufgrund des kleinen Modenvolumens lassen sich von Strahlen, die in optischen Ein-Moden-Fasern geführt werden, wesentlich höhere Spitzenintensitäten über längere Strecken erreichen als bei frei propagierenden Gaußschen Strahlen, und nichtlineare Effekte lassen sich effizienter nutzen. Die nichtlineare Selbst-Phasenmodulation erzeugt dabei neue Frequenzkomponenten, die das Spektrum verbreitern. Das zeitliche „Auseinanderfließen“ des Wellenpakets durch Gruppengeschwindigkeitsdispersion limitiert dabei die spektrale Verbreiterung. Wie schnell der Puls „zerfließt“, ist abhängig von dem bei Wellenlängen eines Ti:Saphir-Lasers immer positiven k'' des Fasermaterials und der anfänglichen Pulsdauer, wie in Abschnitt 3.5 diskutiert. Am effizientesten wird das Spektrum dabei verbreitert, wenn der Eingangspuls einen leichten „down-chirp“ aufweist, so daß er erst innerhalb der Faser seine minimale Länge und maximale Intensität erreicht. Zur Erzeugung kürzerer Pulse können die entstandenen Pulse mit starkem „chirp“ nachträglich mit einem Prismen- oder Gitterkompressor auf bandbreitenbegrenzte Dauer komprimiert werden.

Für Anwendungen der Frequenzmessungen ist die Dauer der Pulse nach der Propagation durch die Faser unwesentlich, allein die Breite des Spektrums ist ausschlaggebend. Unter der Annahme, daß die nichtlinearen Prozesse in der Faser die Kohärenz zwischen den Pulsen erhalten, sollte die Modenstruktur des Frequenzkamms auf den verbreiterten Kamm „vererbt“ werden: Falls jeder Puls dieselben nichtlinearen und dispersiven Prozesse in der Faser erfährt, besitzt die Einhüllendenfunktion der (nun stark verzerrten und geschirpten) Pulse am Ausgang der Faser immer noch dieselbe Periodizität mit der Frequenz f_r der Pulsrepetition; der Modenabstand ist dadurch festgelegt. Als ein möglicher kohärenzzerstörender Prozeß jedoch könnte z. B. stimulierte Raman-Streuung zu einem inkohärenten Rauschhintergrund führen. Auch Intensitätsfluktuationen des Lasers könnten durch die nichtlinearen Prozesse verstärkt werden, was zu einer erhöhten Linienbreite der Moden des erweiterten Kamms führen würde (Phasen- und Amplitudenrauschen des Signals). Unsere Experimente zeigen jedoch, daß die Kohärenz der Pulse auch nach dem Faserdurchgang erhalten bleibt und solche inkohärenten Effekte eine untergeordnete Rolle spielen (s. u.).

Auch in der Frequenz-Darstellung läßt sich recht einfach verstehen, daß der verbreiterte Modenkamm notwendigerweise den ursprünglichen Kamm mit Modenabstand f_r fortsetzen muß (unter der Annahme, daß er überhaupt eine Modenstruktur besitzt): Da der nichtlineare Brechungsindex durch $n_2 = (3/4n^2\varepsilon_0c)\chi^{(3)}$ mit der nichtlinearen Suszeptibilität zusammenhängt, läßt sich die Selbst-Phasenmodulation im Frequenzbild als Vier-Wellen-Mischprozeß deuten. Neue Frequenzkomponenten entstehen als nichtlineares Produkt dreier Frequenzen. Nur solche

Frequenzen werden phasenangepaßt produziert, deren Brechungsindex sich nicht zu stark von dem der erzeugenden Frequenzen unterscheidet, die also (bei einem isotropen dispersiven Medium) nahe bei den Ausgangsfrequenzen liegen. Dafür kommen nur Prozesse in Frage, bei denen die erzeugte Frequenz als Addition einer dritten Frequenz zur Differenz zweier Frequenzen gebildet wird. Auf diese Weise können aus äquidistanten Moden des Femtosekundenlasers mit den Frequenzen $f_n = f_0 + n f_r$ durch den $\chi^{(3)}$ -Prozeß wiederum nur Moden produziert werden, die in dieses äquidistante Raster passen: die Modenstruktur des ursprünglichen Laserspektrums wird „vererbt“.

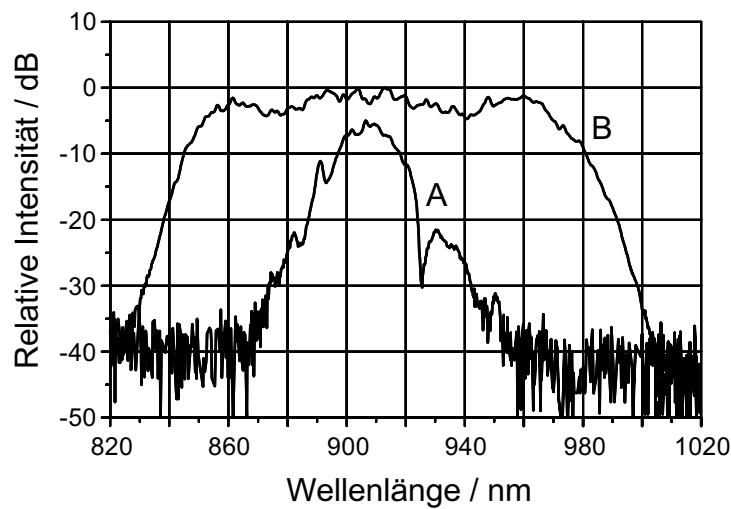


Fig. 4.5: Beobachtete spektrale Verbreiterung von 73 fs-Pulsen ($f_r = 76$ MHz, 1.5-faches Pulsdauer-Bandbreite-Produkt) nach Passieren einer 40 cm langen optischen Ein-Moden-Faser. A: 8 mW des Ti:Saphir-Lasers eingekoppelt in die Faser, B: dieselbe Situation mit 225 mW mittlerer Leistung, gemessen am Faseraustrag. Bei dem verbreiterten Spektrum können Laserdioden zuverlässig auf Moden phasenstabilisiert werden, deren Leistung weniger als -10 dB des Maximums beträgt.

Eine für unsere Konfiguration sinnvolle Faserlänge wird in Kapitel 3 zu ca. 36 cm berechnet, in den Experimenten wurden ca. 40 cm Faserlänge einer gewöhnlichen Ein-Moden-Faser (Modell F-SF, Newport, Mittenwellenlänge 820 nm) verwendet. Um systematische Unsicherheiten zu vermeiden, die durch langsame Drifts der Faserlänge aufgrund einer Änderung der Umgebungstemperatur auftreten, kann das Schwebungssignal für die Phasenstabilisation der Pulsrepetitionsrate erst nach dem Faserdurchgang gemessen werden, genauso wie sämtliche Schwebungssignale zwischen einzelnen Moden und cw-Lasern. Dies wird jedoch vor allem bei der Verwendung von längeren Fasern wichtig, in unseren Experimenten ist die Detektion des Signals vor der Faser ausreichend: Eine Abschätzung der Größenordnungen der Effekte (therm.

Änderung des Brechungsindex ca. $10^{-5}/\text{K}$, therm. Ausdehnung nur ca. $5 \times 10^{-7}/\text{K}$) liefert bei einer angenommenen Temperaturänderung von maximal 1 K pro Stunde für unsere Faserlänge einen systematischen relativen Frequenzfehler in f_r (und damit auch für das gemessene Intervall) im Bereich von $< 10^{-17}$. Mögliche Verzerrungen der Äquidistanz der Moden des Kamms durch die Wellenlängenabhängigkeit der thermischen Änderung des Brechungsindex bewegen sich mindestens eine Größenordnung darunter (Opt. Eigenschaften von Quarzglas aus [Dri87]). Abbildung 4.5 zeigt die beobachtete Verbreiterung des Spektrums, die mit dem kommerziellen System (Mira 900, Coherent Inc., gepumpt von einem 5 W frequenzverdoppelten Nd:YVO₄-Laser, Modell Verdi, Coherent Inc.) erreicht wurde.

Mit diesem Spektrum ließ sich nun sogar ein Intervall einer Größe von 45.2 THz zwischen 848 nm und 973 nm überbrücken, welches bei der Messung des $1S$ - $2S$ Übergangs in Wasserstoff auftritt. Die Laserdioden können dabei auf Moden mit weniger als -10 dB der Maximalintensität stabilisiert werden.

Ein wichtiges Ergebnis dieser Arbeit ist die Erkenntnis, daß die Kohärenz des Pulszuges nach dem Faserdurchgang in unseren Experimenten erhalten bleibt und inkohärente Effekte eine untergeordnete Rolle spielen: Das auf 45.2 THz verbreiterte Spektrum unserer Experimente zeigte die erwartete Modenstruktur (neuerdings konnte diese sogar bei einem auf ein Intervall von 282 THz verbreiterten Modenkamm in unserem Labor beobachtet werden [Hol00]). Auch die spektrale Gleichverteilung der Moden nach dem Faserdurchgang konnte inzwischen für das 45 THz-Intervall nachgewiesen werden [Hol00], in einem ähnlichen Experiment wie in Abschnitt 4.9 beschrieben. Zukünftige Experimente zu den Rauscheigenschaften der Moden könnten sich jedoch genauer mit der Untersuchung der Grenzen der kohärenten Verbreiterung des Modenkamms und der detaillierteren Charakterisierung der Prozesse in der Faser beschäftigen.

Die jüngste Entwicklung hat gezeigt, daß mit speziellen Fasern sogar extreme Verbreiterungen des Spektrums möglich sind. Mit sogenannten „photonischen Kristall-Fasern“ [Kni96] konnten schon mit 200 fs-Pulsen Spektren erzeugt werden, die vom nahen UV (< 400 nm) bis ins Infrarote zu über 1600 nm reichen, d. h. über zwei Oktaven [Wad99, Ran99].

4.4 Bestimmung der Modenanzahl in einem Frequenzintervall

Wenn ein großes Frequenzintervall z.B. zwischen zwei cw-Lasern mit Hilfe des Frequenzkamms vermessen wird, so lassen sich die Frequenzen der Schwebungssignale der beiden Laser mit benachbarten Moden des Kamms sehr genau messen bzw. auf Referenz-Frequenzen stabilisieren. Auch die Repetitionsrate f_r kann mit der Genauigkeit der Radiofrequenz-Referenz

vermessen werden. Die Bestimmung der Frequenzdifferenz $n f_r$ kann jedoch mehrdeutig sein, wenn die Anzahl der Moden n innerhalb des Intervalls nicht bekannt ist. Dies ist kein prinzipielles Problem: Ist die Frequenz der beteiligten cw-Laser schon vorher mit einer Unsicherheit $< f_r/2$ bekannt, so ist die Zuordnung eindeutig. Dies ist z. B. möglich, wenn der Laser eine genügend hohe Repetitionsrate hat, so daß die cw-Frequenzen mit einem kommerziellen Wellenlängen-Meßgerät (von uns verwendet: Burleigh, Modell der Serie WA-20, mit einer Auflösung von 300 MHz) bestimmt werden können. Ein seit kurzem erhältlicher Ti:Saphir-Ringlaser [Bar99] mit einer Repetitionsrate von $f_r = 2$ GHz läßt eine solche einfache Bestimmung der Modenzahl zu. Bei den bisher erhältlichen kommerziellen Femtosekunden-Lasern mit einer Pulswiederholrate im Bereich von 100 MHz, wie bei den Experimenten dieser Arbeit verwendet, muß jedoch auf andere Methoden zurückgegriffen werden.

Eine denkbare Bestimmung von n durch Beobachtung einer Frequenzverschiebung $n \times \delta f_r$ des Schwebungssignals mit einer der Moden bei Änderung von f_r um δf_r könnte sich schwierig gestalten. Um zwischen der Modenzahl n und $n - 1$ zu unterscheiden, muß die Frequenzverschiebung mit einer Auflösung von δf_r bestimmt werden können. Die Verschiebung darf jedoch auch nicht zu groß werden, da es sonst schwierig wird, einen Laser bei einem sehr großen Frequenzsprung $n \times \delta f_r$ auf eine Mode stabilisiert zu halten, um die Größe der Frequenzverschiebung zu messen. Dieses Schema wird besonders problematisch bei Verwendung einer hohen Modenzahl n , was natürlich der interessanteste Einsatzbereich für den modengekoppelten Laser ist.

Bei unseren Experimenten haben wir zur Bestimmung der Modenzahl einen externen Resonator als spektralen Filter für den Modenkamm benutzt, dessen freier Spektralbereich exakt ein ganzzahliges Vielfaches $N = 20$ von f_r ist. Ein solcher Resonator transmittiert nur jede N -te Mode des Frequenzkamms und erhöht damit effektiv den Modenabstand um einen Faktor N . Bei genügend hohem Multiplikator N wird so die Bestimmung der Modenzahl mit einem Wellenlängenmeßgerät eindeutig, wie beispielsweise in unseren Experimenten bei einem effektiven Abstand von $N f_r = 20 \times 75 \text{ MHz} = 1.5 \text{ GHz}$. Ein ähnliches Schema wurde zuvor schon in [Fer82] benutzt. Auch im Zeitbereich läßt sich der Effekt elegant veranschaulichen: Bei einem Verhältnis von $1:N$ aus dem Abstand der aktiven Moden des Laserresonators und dem freien Spektralbereich des externen Resonators — also einem Verhältnis der Resonatorlängen von $N:1$ — muß ein Puls innerhalb des externen Resonators N -mal umlaufen, bevor der nächste Puls aus dem Laser den Resonator erreicht. Dadurch wird die Repetitionsrate im Resonator-Ausgangssignal um einen Faktor N erhöht.

Um bei diesem Verfahren sicherzugehen, daß das Verhältnis aus dem freien Spektralbereich FSR und dem Modenabstand f_r des Kamms tatsächlich genau N ist, muß man das Transmissions-Signal des Resonators beobachten. Läßt sich dieses Verhältnis nicht als Bruch zweier kleiner ganzer Zahlen ausdrücken, so ist die Transmissionswahrscheinlichkeit der quasi

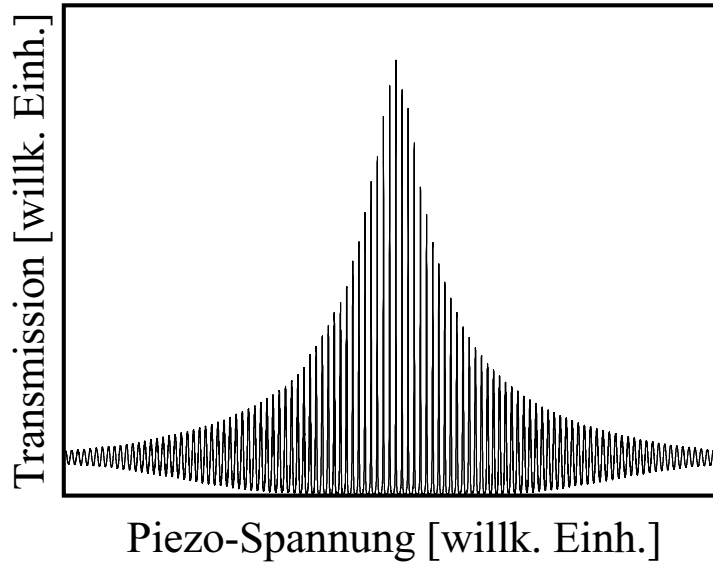


Fig. 4.6: Gemessene Transmission des Lichts eines modengekoppelten Lasers durch einen Resonator der Finesse F , als Funktion der Spannung der Piezokeramik, die den Abstand der Spiegel stellt. Weit verstimmt transmittiert der Resonator im Mittel eine von $2F/\pi \approx 200$ Moden, was zu einem konstanten Hintergrundsignal führt. Bei dem zentralen Maximum ist das Verhältnis aus Pulsrepetitionrate und freiem Spektralbereich genau 1:20.

statistisch verteilten Lasermoden durch

$$\frac{1}{\text{FSR}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{1 + \left(\frac{\nu}{\Delta\nu/2}\right)^2} d\nu = \frac{\pi \Delta\nu}{2\text{FSR}} = \frac{\pi}{2F} \quad (4.3)$$

gegeben. Die Transmission, exakt durch eine Airy-Funktion beschrieben, wurde hier für eine Resonator-Finesse $F \gg 1$ durch eine Lorentz-Funktion der Halbwertsbreite $\Delta\nu$ angenähert. Im Mittel wird also eine von $2F/\pi$ Moden des Kamms transmittiert. Daher ändert sich aufgrund der großen Modenanzahl die Transmission des Resonators in diesem Falle nicht bei einer Längenänderung.

Ist das Verhältnis jedoch ein kleines ganzzahliges Verhältnis, dann beobachtet man Transmissionsresonanzen, wie in Abbildung 4.6 gezeigt. Abbildung 4.7 erklärt das Zustandekommen des beobachteten Transmissionssignals. Alle Maxima in Abbildung 4.6 entsprechen der Transmission jeder 20. Mode über einen bestimmten Spektralbereich. Jedoch stimmen die Abstände der Resonator-Eigenfrequenzen und der Lasermoden bei der zentralen Resonanz am besten, d. h. über den größtmöglichen Spektralbereich, überein (Abbildung 4.7). In diesem Fall limitiert die Dispersion des externen Resonators die Breite dieses Spektralbereichs, in erster Linie die Dispersion der Spiegel. Zahlenverhältnisse höherer Ordnung, z. B. 10:201, führen zu Transmis-

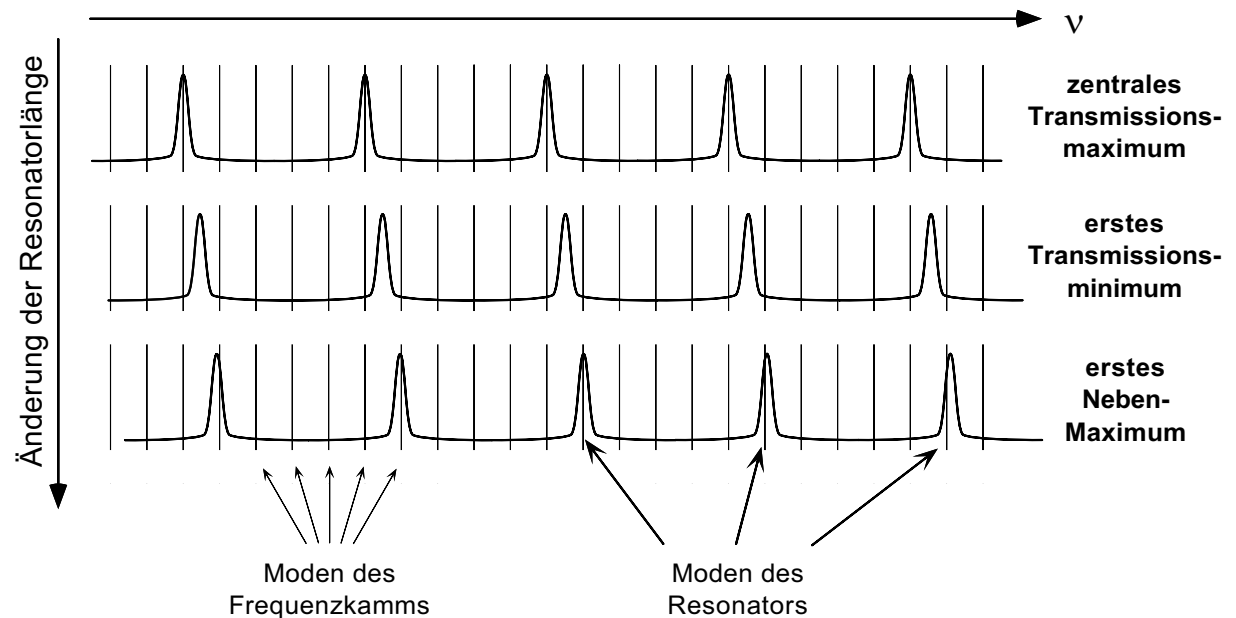


Fig. 4.7: Schematische Darstellung der Transmission des Modenkamms durch einen externen Resonator mit einer Länge, bei der jede 5. Mode transmittiert wird. Eine Änderung δL der Resonatorlänge L verschiebt die Absolutfrequenzen der Resonanzen ($\delta f_{\text{Res}}/f_{\text{Res}} = -\delta L/L$), so daß in der Transmission abwechselnd Maxima und Minima auftreten. Dabei ändert sich ebenfalls der freie Spektralbereich ($\delta \text{FSR}/\text{FSR} = -\delta L/L$). Während bei dem zentralen Maximum der Transmission (oberstes Teilbild) die Transmission der Moden über einen maximalen, nur durch Dispersion der Resonatorspiegel begrenzten Spektralbereich möglich ist, geraten bei zunehmender Ordnung der Nebenmaxima die Moden am Rand des Frequenzkamms immer mehr außer Resonanz (unterstes Teilbild).

sionsresonanzen mit geringerem Kontrast und geringerer Intensität; sie können deutlich von den Resonanzen bei kleineren Verhältnissen unterschieden werden.

Mit dem von uns benutzten Resonator (Coherent, Modell 240-2-C), der im Experiment zur Bestimmung der Frequenz der D_1 Linie in Cäsium zum Einsatz kam (Kapitel 5), konnten gleichzeitig Moden in einem Abstand von 18 THz transmittiert und ihre Schwebungssignale mit cw-Laserdioden beobachtet werden (in Abschnitt 4.6 beschrieben). Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis dieser Schwebungssignale reichte mit weniger als 10 dB in 400 kHz Auflösungsbreite zwar zur eindeutigen Beobachtung mit einem Spektrum-Analysator aus, war jedoch für eine Phasenstabilisierung der Laserdioden um mindestens 20 dB zu gering. Daher wurden die Laserdioden direkt auf die ungefilterten Moden des Femtosekundenlasers mit ausreichendem Signal-zu-Rausch-Verhältnis phasenstabilisiert, während zusätzlich die Schwebungssignale mit den gefilterten Moden im Ausgangssignal des externen Resonators auf einem Spektrum-

Analysator beobachtet wurden. Der Spiegelabstand des externen Resonators war dabei über einige 10 s ausreichend stabil, so daß man ihn „per Hand“ (über die Spannung an einer Piezokeramik) nachstellen und den Resonator in Resonanz mit den Lasermode halten konnte. Tauchten die Schwebungssignale der beiden stabilisierten Laserdioden mit dem gefilterten Kamm, der nur jede 20. Mode enthält, bei derselben Frequenz auf (und nicht um 75 MHz oder ein Mehrfaches davon versetzt), so betrug die Anzahl der Moden innerhalb des Intervalls von 18 THz ein Vielfaches der 20-fachen Pulsrepetitionsrate. Mit einem Wellenlängenmeßgerät konnten nun die Frequenzen der Laserdioden mit einer Auflösung besser als $20 \times 75 \text{ MHz}/2 = 750 \text{ MHz}$ gemessen und damit die Anzahl der Moden eindeutig bestimmt werden.

Die durch Dispersion limitierte Transmissions-Bandbreite des Resonators war für ein bei der Messung der Cäsium D_1 Linie zu überbrückendes Intervall von 18 THz ausreichend; bei größeren Frequenz-Intervallen müßten im Resonator Spiegel mit flacher Dispersion über einen größeren Spektralbereich eingesetzt werden. Bei der Messung der Frequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in Wasserstoff (Kapitel 6), bei der ein Intervall von 45 THz überbrückt wurde, war eine Bestimmung der Modenzahl jedoch nicht nötig, da aufgrund einer früheren Kalibrierung des verwendeten Methan-stabilisierten He-Ne-Lasers [Ude97a] die Größe des Intervalls bis auf wenige 10 Hz bekannt war.

Die Zuverlässigkeit dieser Technik des Moden-Zählens konnten wir im Rahmen der Experimente zur Integrität des Frequenzkamms überprüfen und bestätigen. Ähnlich wie bei dem in Abschnitt 4.9 beschriebenen Experiment zur Übereinstimmung von Pulswiederholrate und Modenabstand, wurden zwei Laserdioden (bei $\lambda = 845.6 \text{ nm}$ und 850.4 nm) im Abstand von etwa 2 THz auf Moden des Frequenzkamms stabilisiert und die Größe des Frequenzintervalls mit einem „optischen Frequenzkamm-Generator“ (OFCG, Abschnitt 4.8) gemessen. Die Frequenzen der Laserdioden wurden zuerst grob (auf 300 MHz genau) mit einem Wellenlängen-Meßgerät (Burleigh, Modell der Serie WA-20) und dann, wie beschrieben, fein mit Hilfe der Schwebungen mit dem Resonator-Ausgangssignal so eingestellt, daß die Anzahl der Moden im Intervall dazwischen genau $20 \times 1325 = 26\,500$ betragen sollte. Die Größe des Frequenzintervalls bei stabilisierter Pulsrepetitionsrate $f_r = 75\,371\,000 \text{ MHz}$ konnte über die Schwebungen der Dioden mit dem Träger und dem 315. Seitenband des OFCGs (Modulationsfrequenz: 6.3418 GHz) tatsächlich wie erwartet zu 1.977 331 5 THz bestimmt werden.

4.5 Phasenstabilisierung

Eine zentrale Rolle bei der präzisen Messung optischer Frequenzen spielen die Phasenstabilisierungen der beteiligten Laser: sie erlauben es, die Frequenzinformation von einem Oszillator auf einen anderen zu übertragen, im Prinzip ohne deren Genauigkeit zu beeinträchtigen. Bei

dem Frequenzkamm eines Femtosekundenlasers z. B. muß die Frequenz eines Mikrowellen-Synthesizers auf die Pulsrepetitionsrate übertragen werden, oder es muß die Frequenz einer Mode des Frequenzkamms auf einen cw-Laser übertragen werden. Dies geschieht durch elektronische Stabilisierungen, die natürlich mit einer Unsicherheit behaftet sind. Bei der Messung von Frequenzen kommt es jedoch nicht darauf an, *Momentanfrequenzen* möglichst genau zu übertragen, sondern über eine bestimmte Meßzeit *gemittelte Frequenzen* mit möglichst geringer Unsicherheit weiterzugeben. Momentane Frequenzabweichungen sind dabei erlaubt, solange sie im Mittel über die Meßzeit verschwinden. Dies wird durch optische Phasenregelkreise (optische PLLs, engl. optical phase locked loops) erreicht. Die Technik der Phasenstabilisierung ist in der Radiofrequenztechnik lange etabliert, PLLs sind heute in jedem Radio zu finden und es existieren ausgereifte theoretische Konzepte zu deren Design [Gar79] und fertige integrierte Schaltkreise, auf die zurückgegriffen werden kann.

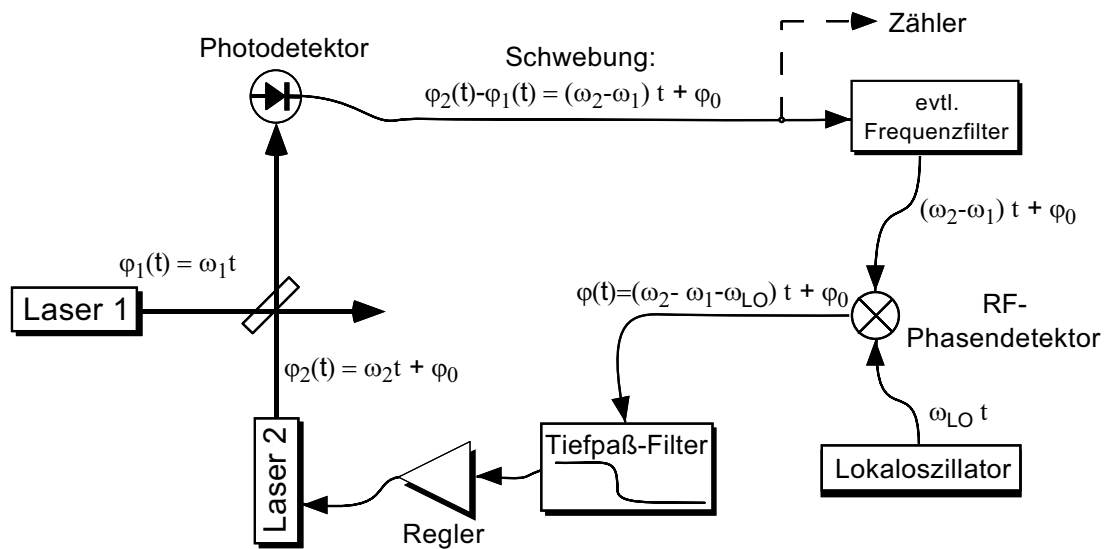


Fig. 4.8: Prinzip des optischen Phasenregelkreises. Im stabilisierten Zustand wird die integrale Größe Phase $\varphi(t) = (\omega_2 - \omega_1 - \omega_{LO})t + \varphi_0$ konstant gehalten. Für die Frequenz gilt damit $\omega_2 = \omega_1 + \omega_{LO}$. Momentane Phasenabweichungen $\Delta\varphi$ führen bei der differentiellen Größe ω in der Meßzeit τ nur zu einem Fehler $\Delta\omega \approx \Delta\varphi/\tau$.

Das angewendete Prinzip zur Stabilisierung einer Schwebungsfrequenz zwischen zwei Lasern ist in Abbildung 4.8 dargestellt. Das Schwebungssignal zweier überlagerter Laserstrahlen $E_1(t) = E_1 e^{-i\omega_1 t}$ und $E_2(t) = E_2 e^{-i\omega_2 t - \varphi_0}$ wird mit einem Photodetektor registriert. Dabei wird ein der Intensität proportionales Signal $U(t) \propto |E_1(t) + E_2(t)|^2 = E_1^2 + E_2^2 + 2E_1 E_2 \cos[(\omega_2 - \omega_1)t + \varphi_0]$ erzeugt, das die Differenzfrequenz der beiden Laser enthält. Die-

ses Signal wird, nachdem es eventuell mit Hilfe eines Frequenzfilters von Störsignalen befreit wurde, in einem Phasendetektor mit einem von einer Radiofrequenzquelle vorgegebenen Signal, dem sogenannten Lokalszillator, verglichen. Der Phasendetektor (in Abbildung 4.8 als RF-Mischer mit nachfolgendem Tiefpaß-Filter dargestellt) bildet dabei die Phasendifferenz der beiden Signale, $\varphi(t) = (\omega_2 - \omega_1 - \omega_{\text{LO}})t + \varphi_0$. Diese wird mit Hilfe des nachfolgenden Reglers (in unseren Experimenten lineare Regler mit Integrator und Proportionalteil) auf einen konstanten Wert geregelt. Bei konstanter Phase muß jedoch deren zeitliche Änderung verschwinden, d. h. $\omega_2 = \omega_1 + \omega_{\text{LO}}$: Die Frequenz des stabilisierten Lasers ist exakt um die genau bekannte Lokalszillator-Frequenz größer als die des anderen Lasers.

Der Vorteil einer Phasenstabilisierung gegenüber einer Frequenzstabilisierung liegt in der Stabilisierung der Phase als Integral der Frequenz über die Meßzeit. Weicht nämlich die Phase aufgrund äußerer Störungen momentan im Mittel um $\Delta\varphi$ (Standardabweichung) von der Sollphase ab, so beträgt die Abweichung der über die Meßzeit τ gemittelten Frequenz $\Delta\nu = \sqrt{2}\Delta\varphi/2\pi\tau$, d. h. der Übertragungsfehler der Frequenz verhält sich proportional zur inversen Meßzeit. Prinzipiell läßt sich damit der durch die Stabilisierung eingeführte Frequenzfehler durch lange Meßzeit beliebig klein machen.

In der Praxis ist die Länge der Meßzeit dadurch begrenzt, daß den Phasenstabilisierungen selbst bei bestem Signal-zu-Rausch-Verhältnis der Schwebung zweier optischer Frequenzen mit geringer Häufigkeit Fehler unterlaufen. Dabei gehen dem Phasendetektor, z. B. aufgrund des verwendeten Filters oder der Bandbreite des Phasendetektors selbst, Zyklen des Signals verloren. Um die relative Anzahl der dadurch verfälschten Daten gering zu halten, muß die Meßzeit entsprechend kurz gehalten werden. In unseren Experimenten haben sich Meßzeiten von 1 s bis 100 s bewährt, je nach Anzahl der gleichzeitig stabilisierten Schwebungen.

Um diese durch eventuell verlorengegangene Zyklen verfälschten Daten zu erkennen, zählen wir die Schwebung im stabilisierten Zustand mit einem Radiofrequenzzähler (siehe Abbildung 4.8). Dabei benutzen wir für den Zähler einen Frequenzfilter, der sich deutlich von dem für den Phasendetektor verwendeten Filter (im Zweifelsfall ist das die Bandbreite des Detektors selbst) unterscheidet. Es ist sehr unwahrscheinlich, daß beide, sowohl Phasendetektor als auch Frequenzzähler, denselben Fehler machen, d. h. der Frequenzzähler die exakte Lokalszillator-Frequenz zählt, obwohl der Phasendetektor einen Zyklus verloren hat. Eventuell verfälschte Daten zeichnen sich dadurch aus, daß sich eine der gezählten Schwebungsfrequenzen von ihrem Lokalszillator signifikant unterscheidet. Obwohl die Experimente zeigen, daß die meisten dieser so detektierten Datenpunkte anscheinend nicht verfälscht sind, lassen sich auf diese Weise sehr effizient „ungültige Punkte“ aus den Daten entfernen. Bei der Messung der 1S-2S Übergangsfrequenz in Wasserstoff wurden 6 verschiedene Schwebungssignale gleichzeitig auf diese Weise überwacht. Dieses Verfahren wird in Abschnitt 4.9 etwas detaillierter im Zusammenhang mit den tatsächlichen experimentellen Daten vorgestellt.

Auf den ersten Blick erscheint es komplizierter, die Schwebung zweier Laser nicht direkt auf eine konstante Phase (Frequenz von 0 Hz), sondern in einer sogenannten „heterodynen“ Phasenregelung auf eine Lokaloszillator-Frequenz zu stabilisieren. Der Grund liegt jedoch im Phasenrauschen der verwendeten Laser: Führen bei einer direkten (homodynen) Phasenregelung schon Abweichungen der beiden Laser um einen halben Zyklus zu einer Mehrdeutigkeit (man kann nicht mehr entscheiden, welcher der beiden Laser in dem Moment die höhere Frequenz hat), so sind Verschiebungen um einen halben Zyklus bei einer heterodynen Phasenstabilisierung unbedenklich, wenn sie in einer Zeit stattfinden, die wesentlich länger ist als eine Schwingungsdauer des Lokaloszillators. Diese führen dann nur zu einem geringen Ansteigen oder Abfallen der Schwebungsfrequenz, das die Bestimmung des Vorzeichens des Regelsignals erlaubt. Mit anderen Worten: Die Regelung funktioniert zuverlässig, solange die Lokaloszillator-Frequenz höher ist als die Breite des Phasenrausch-Spektrums der beteiligten Laser. Viele der in den beschriebenen Experimenten eingesetzten Laser sind kompakte Gitter-stabilisierte Diodenlaser in Littrow-Anordnung [Ric95], deren Phasenrausch-Spektrum bis typischerweise 10 MHz kontinuierlich abfällt, um dann ein durch Fluktuationen der Ladungsträgerdichte verursachtes Plateau zu erreichen [Oht92]. Die von uns verwendeten Lokaloszillator-Frequenzen bewegen sich daher im Bereich von 20 MHz bis 80 MHz.

Die verschiedenen zur Phasenregelung verwendeten Schaltungen unterscheiden sich vor allem durch den verwendeten Phasendetektor. So können die einfachsten Phasendetektoren aus einem einfachen Radiofrequenz-Mischer mit nachfolgendem Tiefpaßfilter (siehe Abbildung 4.8) bestehen, der im Wesentlichen die beiden sinusförmigen Signale multipliziert. Das dabei erzeugte Fehlersignal für die Phasenregelung ist ebenfalls sinusförmig, so daß der Regelung nur ein Fangbereich von einem Zyklus zur Verfügung steht. Ist die Bandbreite des Regelkreises nicht groß genug, um Störungen schnell auszugleichen und der Fangbereich wird überschritten, so gehen der Phasenstabilisierung unbemerkt Zyklen verloren, sie funktioniert nicht mehr zuverlässig. Um bei den verwendeten Laserdioden mit relativ breitem Phasenrausch-Spektrum auch mit einer moderaten Regelbandbreite von weniger als 1 MHz auszukommen, wurden von Marco Prevedelli in unserem Labor digitale Phasendetektoren entwickelt [Pre95a], die einen Fangbereich von ± 16 Zyklen besitzen. Diese werden fast ausschließlich in unserem experimentellen Aufbau benutzt. Technische Details der Phasenregelkreise sind in [Pre95a, Ude97b, Wyn93, Kön93, And93] zu finden.

4.6 Rauscharme Detektion von Schwebungssignalen

Um große Frequenzintervalle mit hoher Präzision messen zu können, müssen Schwebungssignale zwischen einem Laser und einer ausgewählten Mode des Kamms detektiert werden, in

Gegenwart vieler anderer Moden, die nur zum Rauschen beitragen. Die Leistung einer einzelnen Mode mit einigen 10 nW (in den Flanken des Frequenzkamms) reicht in Anwesenheit des Lichts aller anderen Moden jedoch erfahrungsgemäß bei weitem nicht aus, um ein Schwebungssignal zu erzeugen, das phasenstabilisiert werden kann (Signal-zu-Rausch-Verhältnis > 30 dB in 400 kHz Auflösungs-Bandbreite). Dieses Problem kann jedoch dadurch gelöst werden, daß man die Moden mit Hilfe eines Beugungsgitters spektral vor-selektiert, so daß das Licht der „nutzlosen“ Moden den Detektor nicht erreicht (Abbildung 4.9).

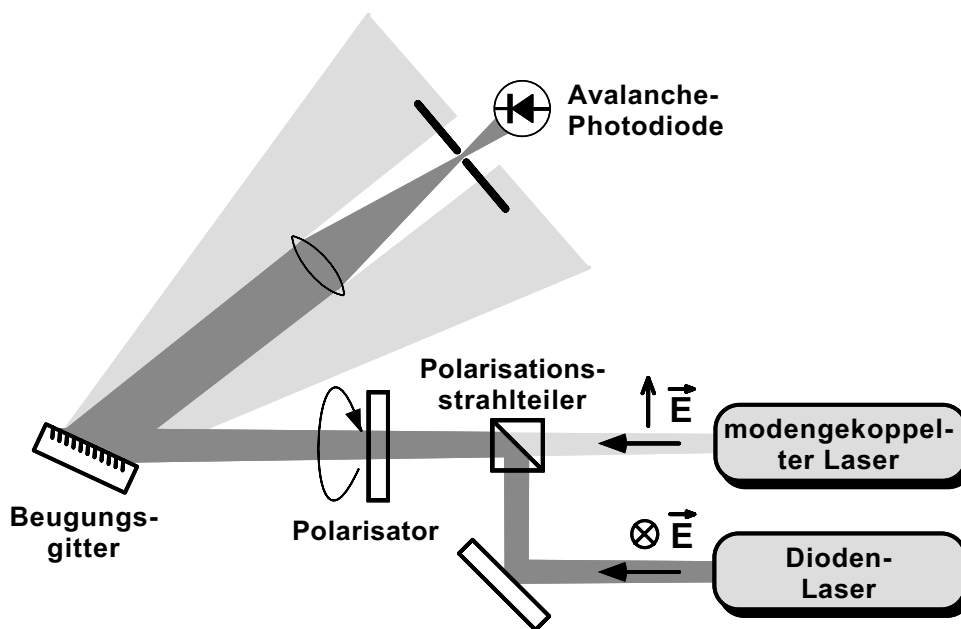


Fig. 4.9: Rauscharme Detektion eines Schwebungssignals mit dem modengekoppelten Laser auf einer Si Avalanche Photodiode. Die Strahlen der beiden Laser werden auf einem Polarisations-Strahlteiler mit orthogonaler Polarisation überlagert und anschließend mit einem drehbaren Polarisator auf eine gemeinsame Polarisationsachse projiziert. Um mögliche Änderungen der Strahlrichtung zu verhindern und die Polarisation optimaler Beugung des Gitters auszunutzen, kann der drehbare Polarisator durch ein $\lambda/2$ -Plättchen und einen festen Polarisator ersetzt werden. In den meisten Fällen ist die gezeigte Blende nicht kritisch und kann die Fläche der Photodiode selbst sein.

Das schrotrauschbegrenzte Signal-zu-Rausch-Verhältnis des Schwebungssignals mit der n -ten Mode, aufgenommen von einem Photodetektor der Bandbreite B_w und einer Quanteneffizienz von η , berechnet sich durch [Kin78]

$$S/N = \frac{\eta}{h\nu B_w} \frac{t P_n (1-t) P_{LD}}{t \sum_k P_k + (1-t) P_{LD}} . \quad (4.4)$$

P_{LD} und P_n sind dabei die Leistungen der Laserdiode bzw. der n -ten Mode, $h\nu$ die Photonen-Energie; t ist die Transmission des einstellbaren Strahlteilers, mit dem die beiden Strahlen überlagert werden. Die Summe \sum_k im Nenner, der die Rauschbeiträge beschreibt, erstreckt sich über alle Moden, die den Detektor erreichen. Wenn der durch das Gitter in Kombination mit der Blende selektierte Spektralbereich $N f_r$ genügend klein ist, so daß die Leistung der Moden in \sum_k ungefähr konstant ist, dann läßt sich die Summe durch $N P_n$ annähern:

$$S/N \approx \frac{\eta}{h\nu B_w} \frac{t P_n (1-t) P_{LD}}{N t P_n + (1-t) P_{LD}}. \quad (4.5)$$

Nun kann man die Transmission t so einstellen, daß sich ein maximales Signal-zu-Rausch Verhältnis ergibt: Mit $t_{\text{opt}} = \sqrt{P_{LD}}/(\sqrt{N P_n} + \sqrt{P_{LD}})$ erhält man

$$(S/N)_{\text{opt}} \approx \frac{\eta}{h\nu B_w} \frac{P_n P_{LD}}{(\sqrt{N P_n} + \sqrt{P_{LD}})^2}. \quad (4.6)$$

Für den Fall $N \ll P_{LD}/P_n$ ist daher die Detektion schrotrauschbegrenzt durch das schwache Signal P_n :

$$(S/N)_{\text{opt}} = \frac{\eta P_n}{h\nu B_w}. \quad (4.7)$$

Das bedeutet: Die Vorselektion durch Gitter und Blende muß genügend effektiv sein, damit auf dem Detektor die Lichtleistung der verbleibenden Moden wesentlich kleiner als die der Laserdiode ist. Dies ist in den spektralen Randbereichen des Frequenzkamms schon mit einer geringen Auflösung des Gitters leicht erreichbar, so daß dort das Schwebungssignal durch das Schrotrauschen von P_n begrenzt detektiert werden kann.

In den vorgestellten Experimenten zur Bestimmung der Frequenz der Cs D_1 Linie und des $1S$ - $2S$ Übergangs in Wasserstoff wurde ein $10 \times 15 \text{ mm}^2$ großes Beugungsgitter mit 1800 Linien/mm benutzt. Der Detektor und eine Linse mit $f = 15 \text{ mm}$ befanden sich in 50 cm Entfernung vom Gitter. Die durch die Fassung der Linse (Durchmesser 5 mm) gebildete Blende reichte aus, um eine Mode in der spektralen Umgebung der Laserdiode zu selektieren und mit einem Signal-zu-Rausch-Verhältnis von mehr als 30 dB in 400 kHz Bandbreite zuverlässig zu stabilisieren.

4.7 Optische Frequenzintervall-Teiler

Von einem weiteren wichtigen Instrument zur präzisen Messung optischer Frequenzen wird in den in dieser Arbeit beschriebenen Experimenten immer wieder an wesentlichen Stellen Gebrauch gemacht: Von dem optischen Frequenzintervall-Teiler, mit dem ein optisches Frequenzintervall beliebiger Größe phasenkohärent halbiert werden kann. Das Prinzip des optischen Frequenzintervall-Teilers wurde 1988 von Prof. T. W. Hänsch zur kohärenten Vermessung optischer Frequenzlücken im Terahertz-Bereich vorgeschlagen [McI88, Hän89, Tel90] und

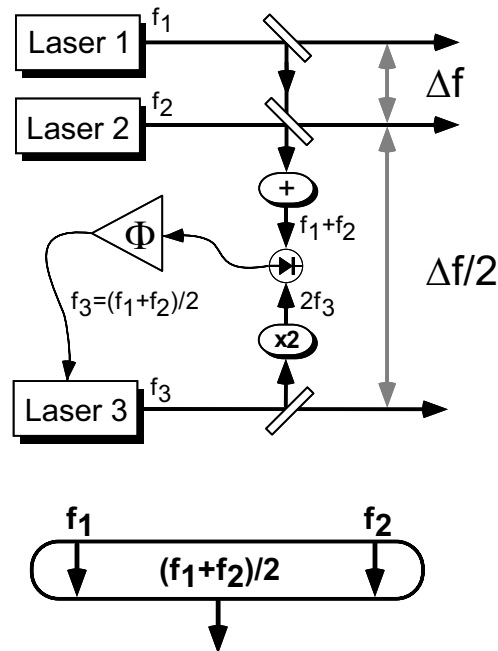


Fig. 4.10: Oben: Schema eines optischen Frequenzintervall-Teilers. Der Phasenregelkreis stabilisiert die zweite harmonische Frequenz von Laser 3 auf die Summenfrequenz von Laser 1 und Laser 2. Damit bildet f_3 die exakte Mittenfrequenz zwischen f_1 und f_2 . Darunter: Für Frequenzintervall-Teiler verwendetes Symbol.

konnte zwei Jahre später erstmals experimentell demonstriert werden [Tel90, Wyn92]. Wie in Abschnitt 2.1 beschrieben, war die ursprüngliche Idee, durch sukzessive Halbierung ein optisches Intervall einer direkten Frequenzmessung über die Messung einer Schwebungsfrequenz zugänglich zu machen. Die Gangbarkeit dieses Wegs konnte im Rahmen der Promotionsarbeit von Thomas Udem durch Überbrückung einer Lücke von 2 THz mit einer 5-stufigen Kaskade aus Intervall-Teilern gezeigt werden [Ude97a, Ude97b].

Das Prinzip eines optischen Frequenzintervall-Teilers ist in Abbildung 4.10 gezeigt: Um die Frequenz f_3 eines dritten Lasers (abgesehen von einer Lokaloszillator-Frequenz f_{LO}) auf die exakte Mittenfrequenz zwischen zwei Lasern mit Frequenzen f_1 und f_2 zu plazieren, wird die zweite Harmonische des dritten Lasers, $2f_3$, auf die Summenfrequenz $f_1 + f_2$ der anderen Laser phasenstabilisiert. Im phasenstabilisierten Zustand gilt dann $2f_3 = f_1 + f_2 + f_{LO}$ oder $f_3 = (f_1 + f_2 + f_{LO})/2$. Durch Vermessung der Lücke zwischen f_1 und f_3 oder alternativ zwischen f_2 und f_3 kann nun die Frequenz des doppelt so großen ursprünglichen Intervalls exakt bestimmt werden.

Die in unseren Messungen verwendeten Frequenzintervall-Teiler sind in Anhang A mit Nennung experimenteller Eckdaten näher beschrieben.

4.8 Der optische Frequenzkamm-Generator (OFCG)

Vor der Entwicklung der Techniken zur Vermessung großer optischer Frequenzintervalle mit Hilfe eines modengekoppelten Lasers stellten „optische Frequenzkamm-Generatoren“ (OFCG) [Kou95] neben der Verwendung kaskadierter optischer Frequenzintervall-Teiler die einzige Möglichkeit zur Überbrückung von Intervallen im Bereich bis zu einigen Terahertz dar. In den hier vorgestellten Experimenten wurde an verschiedenen Stellen ein OFCG mit Wellenlängen um 850 nm verwendet, der von Motonobu Kourogi aus der Gruppe von Prof. M. Ohtsu vom Tokyo Institute of Technology, Japan, freundlicherweise in unserem Labor aufgebaut worden war: zur Überprüfung der Integrität des Frequenzkamms des Femtosekundenlasers (Abschnitt 4.9), zur Überprüfung der Technik zur Bestimmung der Modenanzahl innerhalb eines Frequenzintervalls (Abschnitt 4.4) und zur Absolutfrequenzmessung des $\text{In}^+ 5s^2\ ^1S_0 - 5s5p\ ^3P_0$ Übergangs (Kapitel 7). In früheren Experimenten war dieser OFCG von uns, ähnlich wie in Kapitel 7 beschrieben, zur Überbrückung von Frequenzlücken bis zu 2 THz in der bisher verwendeten harmonischen Frequenzkette eingesetzt worden: zur Messung der Isotopie-Frequenzverschiebung zwischen Wasserstoff und Deuterium [Hub98], zur Messung der D_2 Linie in Cäsium bei 852 nm [Ude00] und zum Vergleich der Messung von Frequenzlücken durch OFCGs und kaskadierte optische Intervallteiler [Ude98].

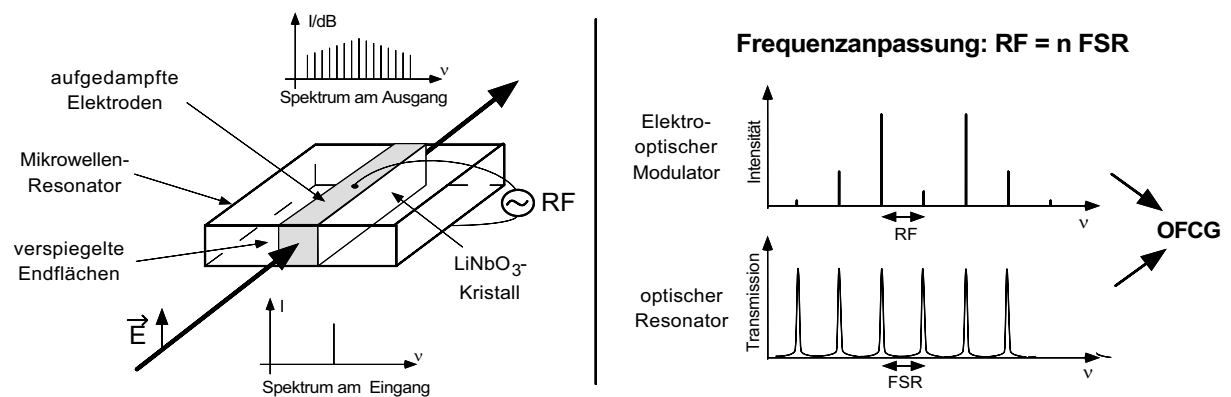


Fig. 4.11: Links: Aufbau des optischen Frequenzkamm-Generators. Rechts: Der OFCG verbindet die Prinzipien von elektro-optischer Modulation und Überhöhung der Lichtleistung in einem optischen Resonator miteinander. Falls die Modulationsfrequenz (RF) ein ganzzahliges Vielfaches des freien Spektralbereichs (FSR) des Resonators beträgt (Frequenzanpassung), werden mit dem Träger auch die Seitenbänder überhöht und können so effizient weitere Seitenbänder erzeugen.

Die Funktionsweise eines OFCG ist ausführlich in [Kou95, Bro94, Kou94, Kou96, Ude97b] beschrieben, dieser Abschnitt faßt kurz die wesentlichen Eigenschaften zusammen. Der OFCG

erzeugt durch effiziente elektro-optische Modulation von Laserlicht eine hohe Anzahl von exakt äquidistanten Modulations-Seitenbändern, die in ähnlicher Weise wie der Frequenzkamm eines modengekoppelten Lasers als „Lineal“ zur Vermessung von Frequenzlücken im optischen Bereich verwendet werden können. Unser OFCG besteht aus einem $1.25 \times 1 \times 21 \text{ mm}^3$ großen LiNbO_3 -Kristall, der als elektro-optischer Modulator dient. Zu diesem Zweck sind auf der Ober- und Unterseite des Kristalls metallische Elektroden aufgedampft, mit denen die Radiofrequenz in den Kristall eingekoppelt wird (siehe Abbildung 4.11). Ein metallischer Mikrowellenresonator sorgt für impedanzangepaßte resonante Einkopplung von etwa 90% der Leistung des auf 10 W verstärkten Signals eines Mikrowellensynthesizers. Zusätzlich zur auf diese Weise erzeugten elektro-optischen Modulation des transmittierten Laserlichts mit hohem Modulationsindex wird die effiziente Seitenband-Erzeugung durch eine weitere Technik erreicht: durch resonante Überhöhung des (modulierten) Lichts in einem optischen Resonator. Dazu sind die gekrümmten Endflächen des LiNbO_3 -Kristalls hochreflektierend verspiegelt (Abbildung 4.11), so daß er einen monolithischen optischen Resonator hoher Güte (die Finesse beträgt etwa 300) mit einem freien Spektralbereich (FSR) von etwa 3.17 GHz bildet. Ist zwischen FSR und Modulationsfrequenz (f_{RF}) die Frequenzanpassungsbedingung $f_{\text{RF}} = n \times \text{FSR}$ mit ganzzahligem n erfüllt, so werden, wenn das Licht des Lasers in Resonanz eingestrahlt wird, auch die Seitenbänder resonant überhöht und können selbst wieder Seitenbänder erzeugen (Abbildung 4.11, rechtes Teilbild). Zusätzlich zu dieser „Energiebilanz-Bedingung“ muß noch eine „Impulsbilanz-Bedingung“ der nichtlinearen Kopplung der Radiofrequenz-Photonen an die optische Photonen, d. h. eine Phasenanpassungsbedingung, erfüllt sein: Da die durch Modulation des Brechungsindex erzeugte „Störung“ des Lichtfelds mit der Gruppengeschwindigkeit v_g im Kristall propagiert, muß die erzeugende Mikrowelle (der kopropagierende Teil der stehenden Welle im Resonator) mit derselben (Phasen-) Geschwindigkeit c_{RF} laufen, um diese Phasenmodulation wirkungsvoll zu verstärken. Diese Bedingung, $c_{\text{RF}} = v_g$, kann durch ein entsprechendes Design des Mikrowellen-Hohlraumresonators erreicht werden, dessen Wellenleiter-Geometrie entscheidend die Phasengeschwindigkeit c_{RF} mitbestimmt [Bro94, Kou94].

Zur Stabilisierung eines Transmissionsmaximums des optischen Resonators auf Resonanz mit der Frequenz des eingestrahlten Lasers kann entweder eine Stabilisierung auf eine Flanke der Resonanz angewendet werden, oder eine dem Pound-Drever-Hall-Verfahren ähnliche Methode der Erzeugung eines Fehlersignals durch Demodulation des transmittierten Lichts verwendet werden [Kou95]. Als Stellglied für die optische Länge des Resonators kann dabei eine Hochspannung an den aufgedampften Elektroden verwendet werden, die den konstanten Anteil des Brechungsindex des Kristalls global ändert.

Im auf Resonanz stabilisierten Zustand berechnet sich die Leistung P_n im n . Seitenband aus der

einfallenden Intensität P_{in} , der Finesse F und der Einkoppel-Effizienz η_{FP} zu [Kou95]:

$$P_n = \eta_{FP} \left(\frac{\pi}{2mF} \right)^2 \exp \left(-\frac{|n|\pi}{mF} \right) P_{\text{in}}, \quad (4.8)$$

wobei m der Modulationsindex für den einmaligen Durchlauf durch den Kristall der Länge L ist, der sich aus dem zeitabhängigen Brechungsindex $n(t) = n_o + (m/Lk) \sin(2\pi f_m t)$ mit der Wellenzahl k ergibt. Bei dem hier beschriebenen OFCG beträgt der Modulationsindex bei einer Radiofrequenzleistung von 40 dBm etwa $m = 0,23 \times \pi$. Nach Gl.(4.8) bedeutet dies eine Verringerung des Signals um 10 dB pro 160 Moden.

Wird der Synthesizer mit einer externen Radiofrequenz-Referenz betrieben, in unserem Fall eine Cs-Atomuhr (Hewlett Packard, Modell 5071A), so ist dadurch der Abstand der Seitenbänder (in unseren Experimenten 6.3418 GHz bzw. 6.3214 GHz) über die gesamte Breite des Kamms hinweg mit der relativen Genauigkeit der Referenz bekannt. Die Breite des Kamms selbst ist dabei durch Dispersion begrenzt: Wegen der Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex des LiNbO₃-Kristalls sind die *Resonatormoden* nicht völlig äquidistant (die Modulations-Seitenbänder sind es!), so daß der OFCG bei einer Entfernung von etwa 2.6 THz vom Träger plötzlich abbricht. Dieses Dispersionslimit ist proportional zur Wurzel des Modulationsindex [Kou95].

4.9 Experimente zur Integrität des Frequenzkamms

Die Vermessung großer Frequenzlücken im optischen Bereich mit Hilfe des Kamms optischer Frequenzen basiert auf der Multiplikation einer Radiofrequenz mit einem großen Faktor $n \approx 10^5$ bis 10^6 . Die Überlegungen zur Erklärung des Spektrums aus Abschnitt 2.2 legen nahe, daß sich die Frequenzdifferenz Δf zwischen zwei entfernten Moden exakt durch Multiplikation der Pulsrepetitionsrate f_r mit der Modenanzahl n innerhalb des betrachteten Frequenzintervalls ergibt: $\Delta f = n \times f_r$. Bei einer angestrebten Genauigkeit der Konversion optischer Frequenzen in Radiofrequenzen, die den Einsatz eines Frequenzkamms in einem „Uhrwerk“ für zukünftige optische Atomuhren (potentielle Genauigkeit: bis zu 10^{-18}) ermöglicht, muß diese Annahme natürlich einer sorgfältigen experimentellen Überprüfung unterzogen werden.

Durch Vergleich mit etablierten Methoden zur Messung großer Frequenzlücken haben wir die Integrität des Frequenzkamms experimentell überprüft. Dabei wurde die gleichmäßige Verteilung der Moden in einem Frequenzintervall von 20.12 THz untersucht und innerhalb der experimentellen Grenzen von 3.0×10^{-17} bestätigt. Durch Vergleich mit einem optischen Frequenzkamm-Generator (OFCG) auf einem Frequenzintervall von 4.15 THz konnte auch die Gleichheit der stabilisierten Repetitionsrate mit dem Modenabstand innerhalb der Grenzen des

Experiments von 6.0×10^{-16} bestätigt werden. Die experimentelle Überprüfung der Gleichverteilung der Moden nach spektraler Verbreiterung in einer optischen Faser (Abschnitt 4.3) wurde hier noch nicht untersucht, konnte jedoch kürzlich in unserem Labor mit einer Genauigkeit von wenigen Teilen in 10^{18} an einem Intervall von 45.2 THz bestätigt werden [Hol00].

Für die Experimente wurde der kommerzielle Femtosekundenlaser Modell Mira 900 von Coherent Inc. benutzt, mit einer Pulsdauer von 73 fs (durch Autokorrelations-Messung bestimmt). Als Pumplaser wurde ein frequenzverdoppelter Nd:YVO₄-Laser (Coherent, Modell Verdi) verwendet, der sich durch rauscharmen transversalen und longitudinalen Ein-Moden-Betrieb auszeichnet. Bei einer spektralen Bandbreite von 6.8 THz (siehe Abb. 4.4) und Annahme von Secans-hyperbolicus-Pulsform entspricht die Pulsdauer der 1.5-fachen Fourier-Begrenzung.

In allen Experimenten wurde ein optischer Frequenzintervall-Teiler (Abschnitt 4.7) benutzt, wobei die zweiten Harmonischen bzw. Summenfrequenzen in demselben KNbO₃-Kristall erzeugt wurden. Die Stabilisierung der Laserdioden auf Moden des Kamms bzw. der Schwebungsfrequenzen der nichtlinearen Produkte wurde durch digitale Phasenregelkreise erreicht (Abschnitt 4.5). Zur rauscharmen Detektion der Schwebungssignale wurde das in Abschnitt 4.6 beschriebene Verfahren der Vor-Selektion der Moden mit Hilfe eines Gitters angewendet.

Auch wenn die Schwebungssignale ein ausreichendes Signal-zu-Rausch-Verhältnis (etwa 30 dB in 1 MHz Bandbreite) haben, um zuverlässig phasenstabilisiert werden zu können, ist es trotzdem möglich, daß dem Phasenregelkreis einzelne optische Zyklen verlorengehen. Um bei der hohen angestrebten Genauigkeit zu verhindern, daß solche Ereignisse die aufgenommenen Daten verfälschen, zählen wir während des Experiments alle phasenstabilisierten Schwebungssignale mit einem Radiofrequenz-Zähler (Hewlett-Packard, HP 53131A) mit. Dabei wird für den Zähler eine andere Bandbreite (10 MHz breiter Bandpaß-Filter) als für den Phasendetektor des Regelkreises (40 MHz Tiefpaß) verwendet. So kann weitestgehend verhindert werden, daß Zähler und Regelkreis gleichzeitig „falsch reagieren“, daß also der Zähler bei einem verlorengegangenen Zyklus fälschlich korrektes Funktionieren signalisiert. Wenn der Ist-Wert (gezähltes Schwebungssignal) vom Soll-Wert (Frequenz des Lokal-Oszillators) mehr als einen bestimmten Schwellenwert abweicht, so wird dieser als unbrauchbar verdächtige Datenpunkt verworfen, auch wenn wahrscheinlich die meisten dieser Datenpunkte nicht durch einen verlorengegangenen Zyklus verfälscht sind.

In einem ersten Experiment, dessen Aufbau in Abbildung 4.12 dargestellt ist, wurden zwei Laserdioden bei 822.8 nm und 870.9 nm mit digitalen Phasenregelkreisen [Pre95a] auf Moden des Kamms mit einem Abstand von 20.12 THz stabilisiert. Dieses Intervall entspricht etwa 267 200 Moden bzw. der 2.9-fachen spektralen Bandbreite (siehe auch Abschnitt 4.3). Die Puls-wiederholrate des Lasers war in diesem Experiment nicht stabilisiert. Die Lokaloszillatoren der Stabilisierungen der beiden Laserdioden waren 20 MHz, jedoch mit unterschiedlichen Vorzei-

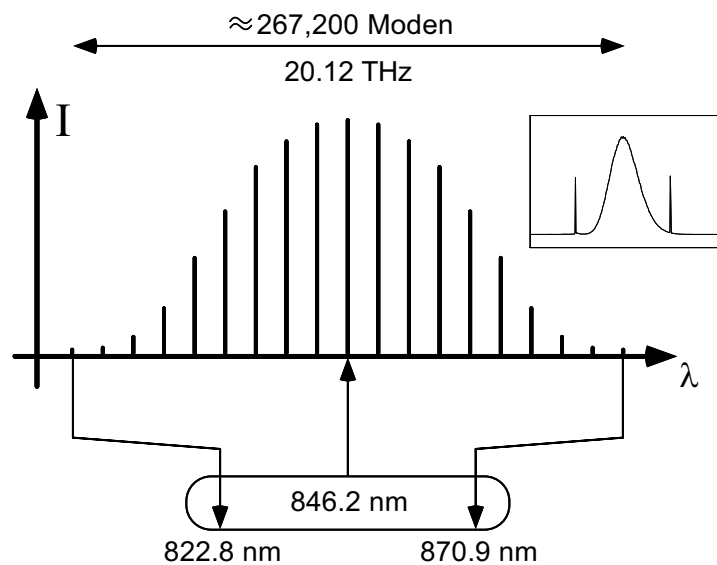


Fig. 4.12: Überprüfung der gleichmäßigen Verteilung der Moden eines modengekoppelten Lasers mit Hilfe eines optischen Frequenzintervall-Teilers. Symmetrische Anordnung über ein Intervall von 20 THz. Kleine Abbildung: gemessenes Spektrum des Frequenzkamms mit eingezeichneten Frequenzen der Laserdioden bei 822.8 nm und 870.0 nm.

chen (positiver bzw. negativer Frequenz-Abstand zu den jeweiligen Moden des Kamms). Wenn nun die Anzahl der Moden zwischen den beiden Laserdioden ungerade ist, so sollte eine Mode exakt bei der Mittenfrequenz der Laserdioden (bei etwa 846.2 nm) zu finden sein. Eine dritte Laserdiode wurde dann 20 MHz unterhalb dieser Mode phasenstabilisiert. Mit einem optischen Frequenzintervall-Teiler (Abschnitt 4.7), der aus diesen drei Laserdioden gebildet wird, konnte nun überprüft werden, ob diese Mode exakt das arithmetische Mittel der Frequenzen bildete. Dazu wurde die Schwebung aus zweiter Harmonischer der mittleren Laserdiode und Summenfrequenz der beiden äußeren Laserdioden mit einem Radiofrequenz-Zähler (Hewlett Packard, HP 53132A) gemessen. Die Schwebungsfrequenz, die aufgrund der nichtlinearen Konversion bei 40 MHz lag, konnte mit einem Signal-zu-Rausch-Verhältnis $> 40 \text{ dB}$ in 1 MHz Bandbreite zuverlässig gezählt werden.⁴ Die Lokal-Oszillatoren und Radiofrequenz-Zähler benutzten alle dieselbe Cäsium-Atomuhr (Hewlett Packard, HP 5071A) als externe Radiofrequenz-Referenz.

Die Messungen wurden mit drei verschiedenen Meßzeiten ausgeführt: Die Zähler wurden mit einer Torzeit von 1 s, 10 s und 100 s (engl. gate time, die Meßzeit für einen Datenpunkt) ausge-

⁴Da bei dem reinen Zählen von Frequenzen die Sicherheit der Erkennung verlorengegangener Zyklen wegfällt, läßt sich deren Zuverlässigkeit testen, indem man überprüft, ob sich diese Schwebung auch noch mit einem wesentlich schlechteren Signal-zu-Rausch-Verhältnis phasenstabilisieren läßt. Ist die „Reserve“ mehr als 10 dB, so gehen wir davon aus, daß das Signal zuverlässig gezählt wird.

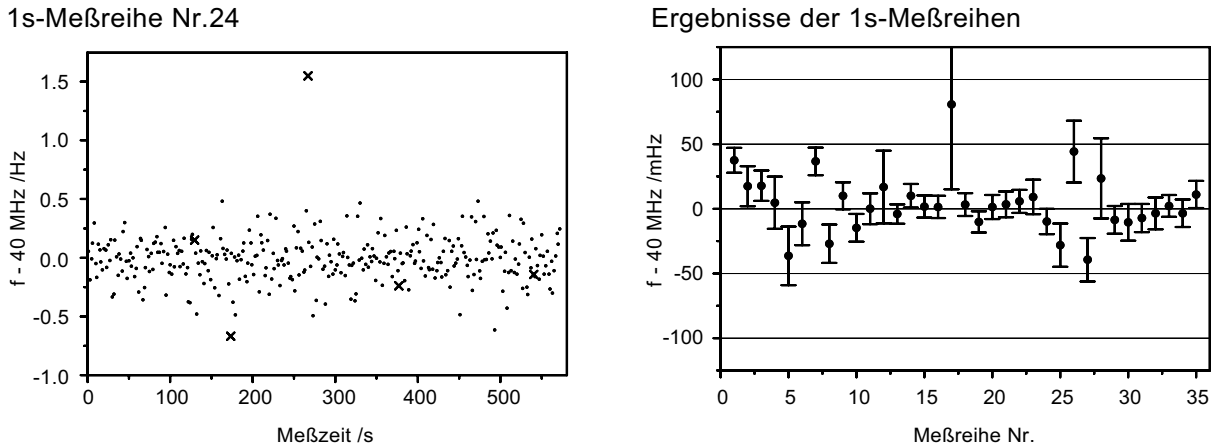


Fig. 4.13: Links: Beispiel einer Meßreihe mit 341 Datenpunkten, aufgenommen in 572 s, von denen 5 (Kreuze) als möglicherweise fehlerbehaftet durch die im Text beschriebene Methode aus den Daten eliminiert wurden. Mittelwert der Meßreihe: -9.8 ± 9.8 mHz. Standardabweichung des einzelnen Meßpunkts: 180 mHz. Rechts: Mittelwerte und Unsicherheiten aller Meßreihen mit 1 s Torzeit.

lesen, entsprechend war die Frequenz-Auflösung der Zähler 1 mHz, 0.1 mHz und $10 \mu\text{Hz}$. Als Schwellenwert für die Verwerfung von Datenpunkten aufgrund möglicher verlorengegangener Zyklen wurde bei 1 s Torzeit 0.5 Hz festgesetzt, bei den anderen Torzeiten entsprechend invers proportional 50 mHz bzw. 5 mHz. Ein verlorengegangener Zyklus würde ja über die entsprechenden Zeiten gemittelt werden. Die genaue Größe dieses Wertes war jedoch nicht kritisch: Bei einer Verringerung änderte sich das Ergebnis unwesentlich.

In Abbildung 4.13 ist in der linken Hälfte eine typische Meßreihe mit insgesamt 341 Datenpunkten mit je 1 s Meßzeit zu sehen, von denen 5 Punkte durch unsere Methode zur Detektion verlorengegangener Zyklen verworfen wurden. Deutlich erkennbar ist, daß durch diese Methode zwar auch Punkte verworfen werden, die wahrscheinlich brauchbare Datenpunkte sind, in erster Linie jedoch tatsächlich die „Ausreißer“ detektiert werden, bei denen offenbar die Phasenstabilisierungen nicht alle einwandfrei arbeiteten. In 35 Meßreihen (für eine Torzeit der Zähler von 1 s) wurden 8442 gültige Datenpunkte aufgenommen (rechte Hälfte von Abbildung 4.13), während 202 weitere Datenpunkte mit der beschriebenen Methode aussortiert wurden. Als Gesamtergebnis der 1 s-Daten ist in Tabelle 4.1 das statistische Mittel über alle 8442 Datenpunkte angegeben. Die analoge Auswertung der Daten mit 10 s und 100 s Meßzeit pro Datenpunkt führte zu den Ergebnissen in Tabelle 4.1. Das Ergebnis dieser Experimente, -0.59 ± 0.48 mHz Abweichung von den erwarteten 40 MHz, wurde als gewichtetes Mittel der drei Werte bestimmt. Dadurch ist die gleichmäßige Verteilung der Moden über ein Intervall von 20 THz innerhalb einer relativen Unsicherheit von 3×10^{-17} bestätigt.

Torzeit in s	Mittlere Abweichung von 40 MHz (mHz)	Relative Abweichung	Gültige Punkte	Schwellen- frequenz	Verworfen Punkte
1	-0.6 ± 2.4 mHz	1.2×10^{-16}	8442	0.5 Hz	202
10	-1.93 ± 0.73 mHz	9.5×10^{-17}	2936	50 mHz	257
100	$+0.54 \pm 0.67$ mHz	3.4×10^{-17}	338	5 mHz	179

Tabelle 4.1: Statistische Mittelwerte und Unsicherheiten, aus den Daten der Experimente mit dem in Abbildung 4.13 skizzierten Versuchsaufbau. Die angegebene „Schwellenfrequenz“ bezieht sich auf die beschriebene Methode zur Detektion evtl. verfälschter Datenpunkte. Ein zusätzlicher, 825 mHz abweichender Punkt wurde aus den 100 s-Daten entfernt, obwohl er nicht durch diese Methode detektiert wurde.

Bei genauerer Betrachtung der Meßergebnisse fällt auf, daß sich die gemessenen statistischen Unsicherheiten nicht wie erwartet invers proportional zur Torzeit und invers proportional zur Wurzel aus der Anzahl der aufgenommenen Datenpunkte verhalten. Die in Abbildung 4.14 gezeigten Histogramme sämtlicher 1 s- und 100 s-Daten zeigen, daß die Datenpunkte sehr gut einer gaussförmigen Verteilung folgen, die tatsächlich annähernd diese Abhängigkeit zeigt. Jedoch liegen einige wenige Datenpunkte entfernt außerhalb der Verteilung und erhöhen damit die als Standardabweichung berechnete Unsicherheit. Deren relative Anzahl wächst mit größeren Torzeiten an. Es ist anzunehmen, daß diese Punkte von verlorenen Zyklen des gezählten Schwebungssignals stammen. Da dieses Schwebungssignal hier nur mit einer einzigen Bandbreite (10 MHz Bandpaß-Filter am Eingang des Zählers) gemessen wird und die Überprüfung mit anderer Bandbreite wegfällt, könnten hier in seltenen Fällen unbemerkt Zyklen verlorengelassen sein.

Als systematische Fehler, die zu einer Abweichung des Meßergebnisses von 40 MHz führen, können Systematiken der Radiofrequenz-Zähler und Änderungen der Lichtweglängen durch Temperaturdrifts genannt werden. Die angegebenen Systematiken der Zähler betragen jeweils 4 mHz, 0.4 mHz und 40 μ Hz für die Torzeiten von 1, 10 und 100 s. Die Doppler-Verschiebungen durch langsame Änderung des Spiegelabstands aufgrund von Temperaturänderungen, vor allem durch Ausdehnung des optischen Tisches, können ungefähr $20 \lambda/K$ bei 1 m Abstand betragen. In unserem Experiment könnte dieser Effekt zu systematischen Frequenzverschiebungen von bis zu 6 mHz führen, bei einer angenommenen Änderung der Raumtemperatur um 1 K pro Stunde.

Neben der Gleichverteilung der Moden mußten folgende zwei weitere Fragen experimentell geklärt werden:

1.) Ist die gleichmäßige Verteilung in allen Abschnitten des Frequenzkamms gewährleistet oder ist das Ergebnis eine Folge der Symmetrie des Experimentes bezüglich des Kamm-Spektrums?

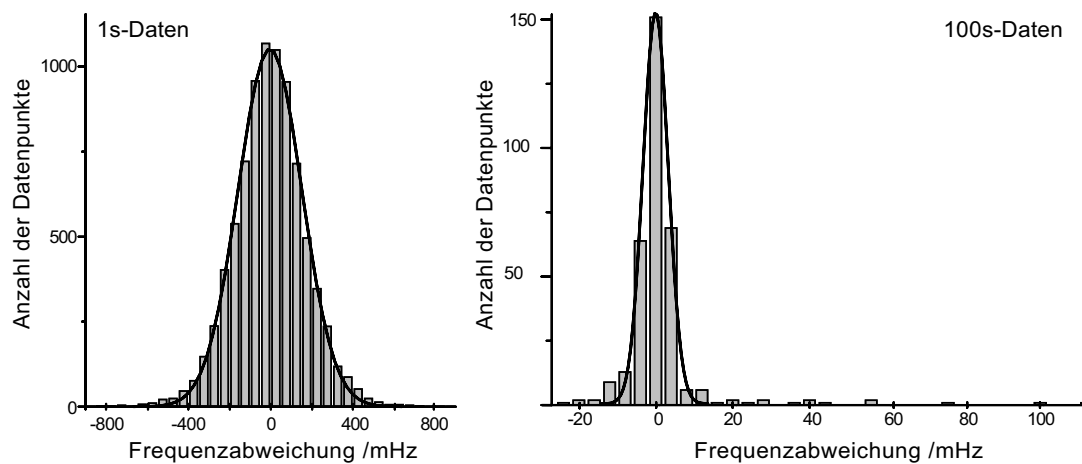


Fig. 4.14: Darstellung der gesamten Daten für 1 s und 100 s Torzeit als Histogramm. Die Verteilungen werden gut durch eine Gauss-Verteilung beschrieben. Einige wenige Datenpunkte für 100 s Torzeit liegen jedoch außerhalb der Verteilung.

2.) Ist der Modenabstand tatsächlich identisch mit der Pulsrepetitionsrate und läßt er sich mit der benötigten Präzision messen oder stabilisieren?

Zur Klärung der ersten Frage führten wir ein Experiment ähnlich dem beschriebenen durch, jedoch mit asymmetrischer Anordnung der Laserdioden. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 4.15 gezeigt. Dabei war das Kamm-Spektrum bei etwa 870 nm zentriert, mit einer Halbwertsbreite von etwa 20 nm, während die äußeren Laserdioden Wellenlängen von $\lambda \approx 845.0$ nm und 855.0 nm hatten. Das Experiment mit diesem kleineren Intervall von 4.15 THz wurde in gleicher Weise wie das Experiment mit 20 THz Intervallbreite durchgeführt, jedoch wurden nur Daten mit einer Torzeit von 10 s gemessen. Insgesamt wurden 1703 gültige Datenpunkten aufgenommen und 326 weitere als möglicherweise fehlerbehaftet detektiert und daher ausgesondert. Das Ergebnis ist eine Abweichung von -0.70 ± 0.61 mHz von der erwarteten Frequenz.

Zur Klärung der zweiten Frage wurde ein Experiment durchgeführt, bei dem tatsächlich die Frequenz eines großen Intervalls zwischen zwei Moden des Frequenzkamms mit einer anderen Methode gemessen wurde. Wie in dem eben beschriebenen Experiment wurde ein 4.15 THz breites Intervall zwischen 845.0 nm und 855.0 nm überbrückt, diesmal jedoch wieder in symmetrischer Konfiguration. Dabei benutzten wir einen „optischen Frequenzkamm-Generator (OFCG)“, einen effizienten elektro-optischen Modulator, der eine hohe Anzahl von Seitenbändern einer Laserfrequenz erzeugt (Abschnitt 4.8). Da mit dem uns zur Verfügung stehenden OFCG nicht wesentlich größere Intervalle als 2 THz überbrückt werden können, benötigten wir wiederum einen optischen Frequenzintervall-Teiler und eine zusätzliche Laserdiode bei 852.5 nm, die das Licht für den OFCG lieferte. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 4.15 gezeigt.

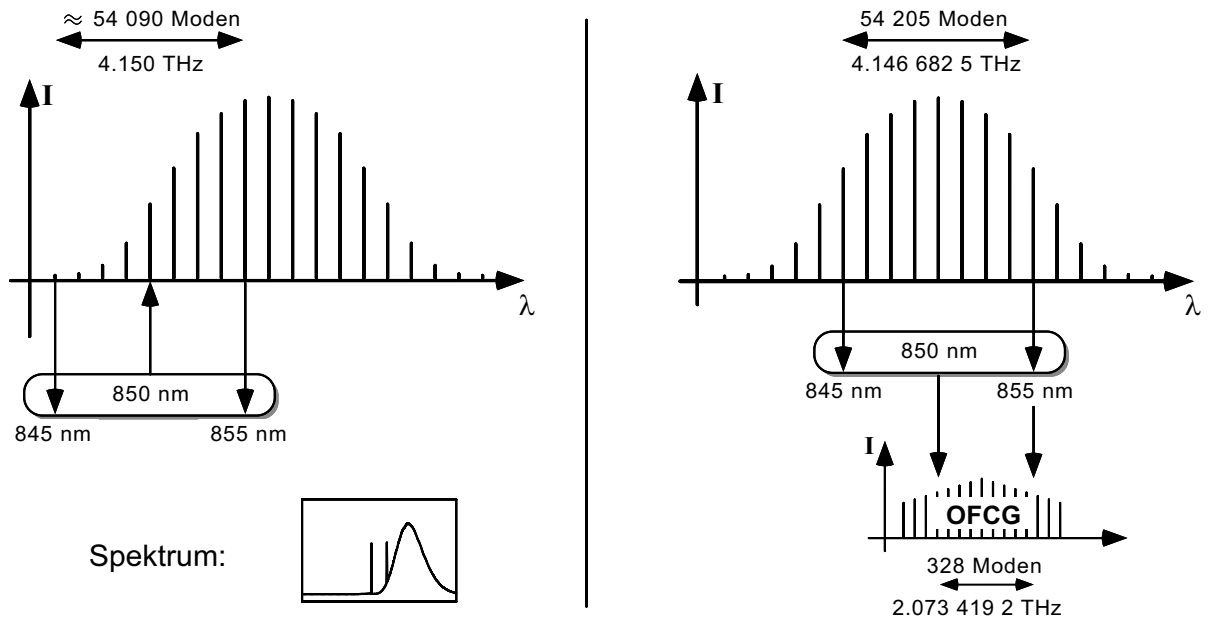


Fig. 4.15: Links: Überprüfung der Gleichverteilung der Moden bei asymmetrischer Anordnung der Laserdioden, darunter: Spektrum des modengekoppelten Lasers mit eingezeichneten Laserdioden bei 845.0 nm und 855.0 nm. Rechts: Überprüfung der Gleichheit von Pulswiederholrate und Modenabstand mit Hilfe eines Optischen Frequenzkamm-Generators (OFCG).

Die Pulsrepetitionsrate des modengekoppelten Lasers wurde in diesem Experiment auf $f_r = 76.5$ MHz stabilisiert. Eine Verringerung des Multiplikationsfaktors des Phasenrauschens (vergleiche Abschnitt 4.2) wurde durch Phasenstabilisierung der 100. Harmonischen von f_r auf 7.65 GHz erreicht, die ein Mikrowellen-Synthesizer (Hewlett-Packard, Modell HP 8360) erzeugte. Die Laserdioden bei 845.0 nm und 855.0 nm wurden jeweils mit einem Abstand von 20 MHz (beide zu höheren Frequenzen hin) auf zwei Moden des modengekoppelten Lasers phasenstabilisiert, deren Abstand $N_{\text{Las}} = 54\,205$ Moden betrug, entsprechend $4.146\,682\,5$ THz. Um die zentrale Laserdiode bei 850.0 nm zu stabilisieren, wurden $N_{\text{OFCG}} = 328$ Seitenbänder des OFCGs benutzt, der mit einer Modulationsfrequenz von $f_{\text{mod}} = 6.321\,4$ GHz betrieben wurde. Dabei wurde das niederfrequente 164. Seitenband im Abstand von $f_{\text{LO}} = -50$ MHz auf die Laserdiode bei 855.0 nm phasenstabilisiert, indem die Laserdiode geregelt wurde, die den OFCG betreibt. Die zentrale Laserdiode wurde ebenfalls im Abstand von $f_{\text{LO}} = -50$ MHz auf das hochfrequente 164. Seitenband des OFCGs stabilisiert. Die in der Teilerstufe aus den Laserdioden bei 845.0 nm, 850.0 nm und 855.0 nm gebildete Schwebungsfrequenz berechnet sich mit

$$\Delta f = 2(N_{\text{Las}}f_r/2 - N_{\text{OFCG}}f_{\text{mod}} - 2f_{\text{LO}}) \quad (4.9)$$

zu $\Delta f = 44.1$ MHz. Bei insgesamt 1859 gültigen und 166 als möglicherweise fehlerhaft de-

Experiment	Mittlere Abweichung	exp. Unsicherh.	Intervallgröße
Gleichverteilung, symm.	-0.59 ± 0.48 mHz	3.0×10^{-17}	20.12 THz
Gleichverteilung, asymm.	-0.70 ± 0.61 mHz	1.7×10^{-16}	4.15 THz
Modenabstand = f_r	2.2 ± 2.5 mHz	6.0×10^{-16}	4.15 THz

Tabelle 4.2: *Ergebnisse der Experimente zur Integrität des Femtosekunden-Frequenzkamms: Überprüfung der gleichmäßigen Modenverteilung, in symmetrischer und asymmetrischer Anordnung des Intervalls bezüglich des Frequenzkamms, und Prüfung der Identität von Modenabstand und Pulswiederholrate. Als relative experimentelle Unsicherheit ist der größere Wert aus statistischer Unsicherheit und mittlerer Abweichung angegeben, bezogen auf die Intervallgröße.*

tektierten und verworfenen Datenpunkten haben wir bei einer Torzeit der Zähler von 10 s eine Abweichung von 2.2 ± 2.5 mHz von den erwarteten 44.1 MHz gefunden.

Damit ist die Gleichheit von Pulsrepetitionsrate und Modenabstand auf einem experimentellen Niveau von mindestens 6.0×10^{-16} gezeigt. Die etwa viermal so große statistische Unsicherheit dieses Experiments gegenüber Tabelle 4.1 stammt möglicherweise von zusätzlichen Phasenfluktuationen, die durch den OFCG eingeführt wurden. Zusammen mit der Bestätigung der Gleichverteilung der Moden, in jüngster Zeit auch nach Verbreiterung des Spektrums auf 45.2 THz in einer Faser, steht damit der Frequenzkamm eines modengekoppelten Lasers als universelles Meßinstrument großer Frequenzlücken zur Verfügung. Die Ergebnisse der Experimente sind noch einmal in Tabelle 4.2 zusammengefaßt.

Kapitel 5

Bestimmung der Absolutfrequenz der Cs D_1 Linie

Das Cäsium-Atom spielt eine herausragende Rolle in Atomphysik und Quantenoptik: Die SI-Sekunde ist über seine Grundzustands-Hyperfeinaufspaltung definiert, und Cäsium ist ein häufig benutztes Element bei Neutralatom-Fallen-Experimenten, bei Laserkühlung und Atom-Interferometrie. Von besonderem Interesse ist die Frequenz der Cs D_1 Linie: Sie spielt eine wichtige Rolle für eine neue Bestimmung der Feinstrukturkonstanten α .

Auf die Zusammenfassung der Meßergebnisse folgt in diesem Kapitel ein Abschnitt über die Bedeutung der Feinstrukturkonstante und ihre Bestimmung im Zusammenhang mit dem hier durchgeführten Experiment. In den weiteren Abschnitten wird über die Messung der Cs D_1 Frequenz berichtet.

5.1 Kurzfassung

Mit den in Abschnitt 4.9 vorgestellten Ergebnissen war es nun möglich, mit dem kommerziellen Femtosekunden-Laser Frequenzintervalle von einer Größe bis zu 20 THz, nach spektraler Verbreiterung in einer optischen Faser sogar bis zu 45.2 THz, mit der Präzision der verwendeten Radiofrequenz-Referenz zu vermessen. Mit der Messung der Frequenz der D_1 Linie in ^{133}Cs bei 335 THz (895 nm) konnte die erste phasenkohärente optische Frequenzmessung mit ultrakurzen Lichtpulsen durchgeführt werden.

In unserem Experiment wurde die vierte Harmonische eines als Frequenzstandard dienenden Methan-stabilisierten He-Ne-Lasers bei 88.4 THz (3.39 μm) mit den Hyperfeinkomponenten der D_1 Linie verglichen. Die dabei auftretende Frequenzlücke von 18.39 THz wurde mit rund

244 000 Moden des Frequenzkamms überbrückt. Unsere Messung liefert für das Hyperfein-Zentroid der D_1 Linie eine Frequenz von 335 116 048 807(41) kHz, einen um fast drei Größenordnungen genaueren Wert als vorhergehende Messungen [Web87]. Mit diesem Ergebnis läßt sich ein neuer Wert für die Feinstrukturkonstante angeben: $\alpha^{-1} = 137.035\,992\,2(40)$. Die Hyperfein-Aufspaltung des $6P_{1/2}$ -Zustands konnte zu 1 167 688(81) kHz bestimmt werden. Die Ergebnisse der Messung wurden in [Ude99a] veröffentlicht.

5.2 Die Feinstrukturkonstante α

Die Feinstrukturkonstante $\alpha = e^2/4\pi\epsilon_0\hbar c$, eine dimensionslose Größe, ist eine der fundamentalen Naturkonstanten der Physik. Als zentrale Kopplungskonstante der Quantenelektrodynamik, der erfolgreichsten physikalischen Theorie mit großer Vorhersage-Genauigkeit, kommt ihr nicht nur theoretisch, sondern auch bei präzisen metrologischen Messungen und deren physikalischer Interpretation eine herausragende Bedeutung zu (siehe z. B. die in Abschnitt 6.2 vorgestellten QED-Tests).

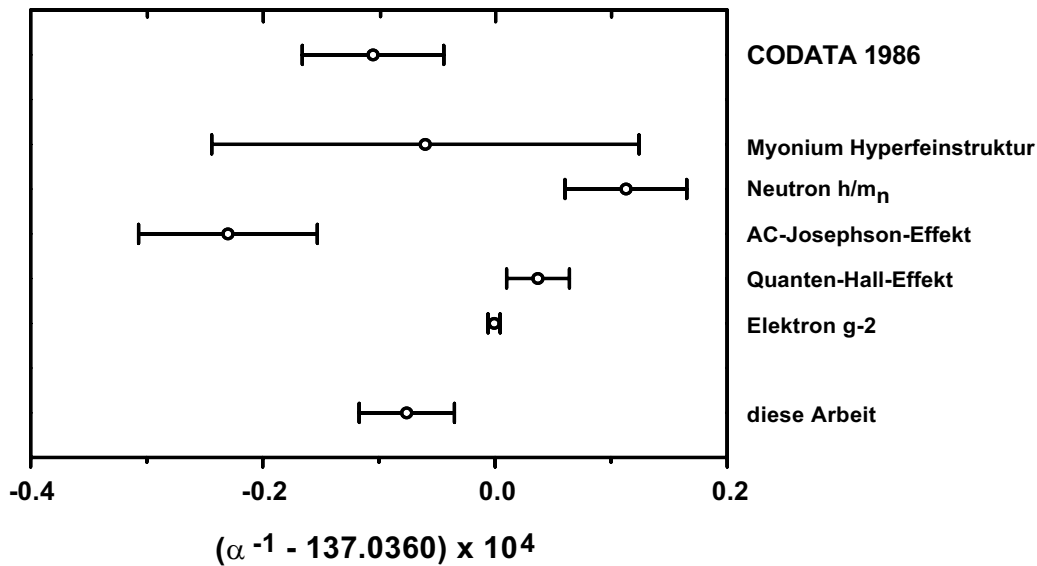


Fig. 5.1: Feinstrukturkonstante α , aus verschiedenen Experimenten bestimmt. Zum Vergleich: Der in Codata 1986 [Cod87] veröffentlichte Wert. Die hier gezeigten Daten stammen aus [Kin96].

Die Feinstrukturkonstante kann aus einer Reihe von unabhängigen Experimenten mit vergleichbarer Genauigkeit bestimmt werden (siehe [Kin96] und Abbildung 5.1). Der bisher genaueste

Wert für die reziproke Feinstrukturkonstante $\alpha^{-1} = 137.035\,999\,93(52)$ wurde aus Messungen der Abweichung des gyromagnetischen Verhältnisses des freien Elektrons vom Diracschen Wert 2 [Van87] mit Hilfe theoretischer Berechnungen der Quantenelektrodynamik (QED) bestimmt [Kin96]. Dieser Wert erfordert die Berechnung einer Vielzahl von Feynman-Graphen, in denen α als Parameter vorkommt, macht also massiven Gebrauch von den Vorhersagen dieser Theorie. Zwar basieren alle Theorien, die den bisher bekannten Bestimmungen von α aus den jeweiligen Experimenten zugrunde liegen, letztlich auf der QED, jedoch gehen tatsächliche QED-Berechnungen in unterschiedlichem Maße ein. Dabei sind vor allem Bestimmungen von α von Interesse, die davon möglichst geringen Gebrauch machen. Abbildung 5.1 gibt einen Überblick über die wichtigsten bisherigen Bestimmungen von α . Alle diese Werte stimmen auf den ersten 7 Dezimalstellen überein. In der achten Dezimalstelle gibt es Hinweise auf eventuelle Diskrepanzen: Die Werte zeigen Abweichungen um bis zu 3.5 kombinierte Standardabweichungen voneinander. Weitere Verbesserung der Präzision der bisherigen Experimente und vor allem neue experimentelle Wege könnten hier mehr Klarheit schaffen. Eine gute Übersicht über diese Problematik bietet [Kin96].

Eine neue experimentelle Bestimmung von α , zu der die Messung der Frequenz der D_1 Linie in Cäsium einen wichtigen Beitrag liefert, macht sich die extrem genaue Kenntnis der Rydberg-Konstanten $R_\infty = \alpha^2 c m_e / 2h$ durch optische Frequenzmessungen an Wasserstoff und Deuterium in Paris und Garching zunutze [Ude97a, Sch99]. Bei einem Experiment an einem Cäsium-Atom-Interferometer, das S. Chu und Mitarbeiter an der Stanford University durchführen, wird die Verschiebung der D_1 Linie $f_{\text{rec}} = f_{D_1}^2 h / 2m_{\text{Cs}} c^2$ durch den Photonenrückstoß gemessen [Pet97]. Mit Hilfe dieser Experimente, bei denen in Zukunft eine Genauigkeit von bis zu 10^{-9} angestrebt wird, kann h/m_e und dadurch (mit der Rydberg-Konstanten) α bestimmt werden, wobei die folgende Beziehung ausgenutzt wird:

$$\alpha^2 = \frac{2R_\infty}{c} \frac{h}{m_e} = 2R_\infty \frac{2f_{\text{rec}} c}{f_{D_1}^2} \frac{m_{\text{Cs}}}{m_p} \frac{m_p}{m_e}. \quad (5.1)$$

Zusammen mit dem noch genauer bekannten Massenverhältnis Proton-Elektron m_p/m_e [Fil94, Far95] und einer neuen Messung des Massenverhältnisses m_{Cs}/m_p [Bra99] bildet die in dieser Arbeit vorgestellte Messung der Cäsium D_1 Frequenz den fehlenden Mosaikstein zu einer neuen Bestimmung der Feinstrukturkonstanten.

5.3 Die Frequenzkette zur Messung der D_1 Linie

In unserem Experiment wurde die Frequenz der D_1 Linie in Cäsium bei 895 nm mit Hilfe des Frequenzkamms des modengekoppelten Lasers mit einer optischen Referenz-Frequenz bei 848 nm verglichen. Die Referenz-Frequenz wurde dabei als vierte Harmonische eines als

Frequenzstandard dienenden CH_4 -stabilisierten He-Ne-Lasers bei $88.4 \text{ THz} = 3.39 \text{ } \mu\text{m}$ erzeugt. Dieser von S. Bagayev und Mitarbeitern in Novosibirsk entwickelte transportierbare Laser [Bag97a] diente bis zu der in Abschnitt 6 beschriebenen Messung des $1S$ - $2S$ -Übergangs in Wasserstoff als Frequenz-Referenz für alle in unserem Labor durchgeführten optischen Frequenz-Messungen. Etwa zwei Jahre zuvor war die Frequenz dieses Lasers an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) Braunschweig mit Hilfe einer phasenkohärenten harmonischen Frequenzkette [Sch96] mit der Mikrowellen-Frequenz einer Cs-Atomuhr verglichen worden. Bei diesem Vergleich wurde der Laser mit einer Unsicherheit von 2.6×10^{-13} kalibriert [Ude97b].

Der schematische Aufbau der benutzten Frequenzkette ist in Abbildung 5.2 gezeigt. In einem Silber-Gallium-Selenid-Kristall wird die zweite Harmonische der Frequenz des He-Ne-Lasers erzeugt, auf die ein NaCl:OH^- -Farbzentrenlaser bei $\lambda = 1.696 \text{ } \mu\text{m}$ phasenstabilisiert wird. Dieser stellt wiederum genügend Leistung zur Verfügung, um in einem zweiten Frequenzverdopplungs-Schritt in einem LiIO_3 -Kristall ein Signal bei 848.1 nm zu erzeugen, 18.39 THz von der Cs D_1 Linie entfernt. Die Frequenz dieses Signals ist nun mit derselben Genauigkeit bekannt wie die des He-Ne-Lasers. Als nächstes werden zwei Laserdioden, bei 848.1 nm und bei 894.6 nm , auf Moden des Frequenzkamms phasenstabilisiert. Wie bei den anderen vorgestellten Experimenten wird auch hier durch Vorselektion der Moden (Abschnitt 4.6) mit Hilfe eines Gitters ein rauscharmes Schwebungssignal mit einem Signal-zu-Rausch-Verhältnis von besser als 30 dB in 400 kHz Bandbreite erzeugt. Damit lassen sich die Laserdioden zuverlässig mit digitalen Phasenregelkreisen (Abschnitt 4.5) stabilisieren. Die Leistung in den beteiligten Moden kann dabei aus dem Spektrum auf etwa 40 nW abgeschätzt werden. Die beiden Laserdioden wurden exakt $244\,000$ Moden voneinander entfernt stabilisiert. Mit Hilfe eines externen Resonators, der als Frequenzfilter nur jede 20. Mode transmittiert und einem kommerziellen Wellenlängen-Meßgerät konnte diese Zahl eindeutig bestimmt werden (Abschnitt 4.4).

Zur Zeit der Durchführung dieses Experiments war die Methode der gleichzeitigen Stabilisierung der Frequenz einer speziellen Mode und der Pulsrepetitionsfrequenz von uns noch nicht entwickelt (Abschnitt 4.2). Daher wurde hier nur die Absolutfrequenz der Mode bei 848.1 nm phasenstabilisiert, auf welche die Laserdiode stabilisiert war. Detektiert wurde dafür das Schwebungssignal zwischen zweiter Harmonischer des Farbzentrenlasers und dieser Laserdiode, während die Frequenz der Mode über die Längenänderung des Laser-Resonators geregelt wurde. Die geringe Regelbandbreite von 10 kHz machte den Einsatz eines 1:128 Frequenzteilers notwendig, sorgte aber gleichzeitig dafür, daß die schnelle Stabilisierung der Laserdiode von der langsamen Stabilisierung des Frequenzkamms entkoppelt war.

Die Pulsrepetitionsrate von ungefähr 75 MHz , die durch die Längenregelung des Lasers zwar auch stabiler, aber nicht mehr unabhängig beeinflussbar war, wurde mit einem Signal-zu-

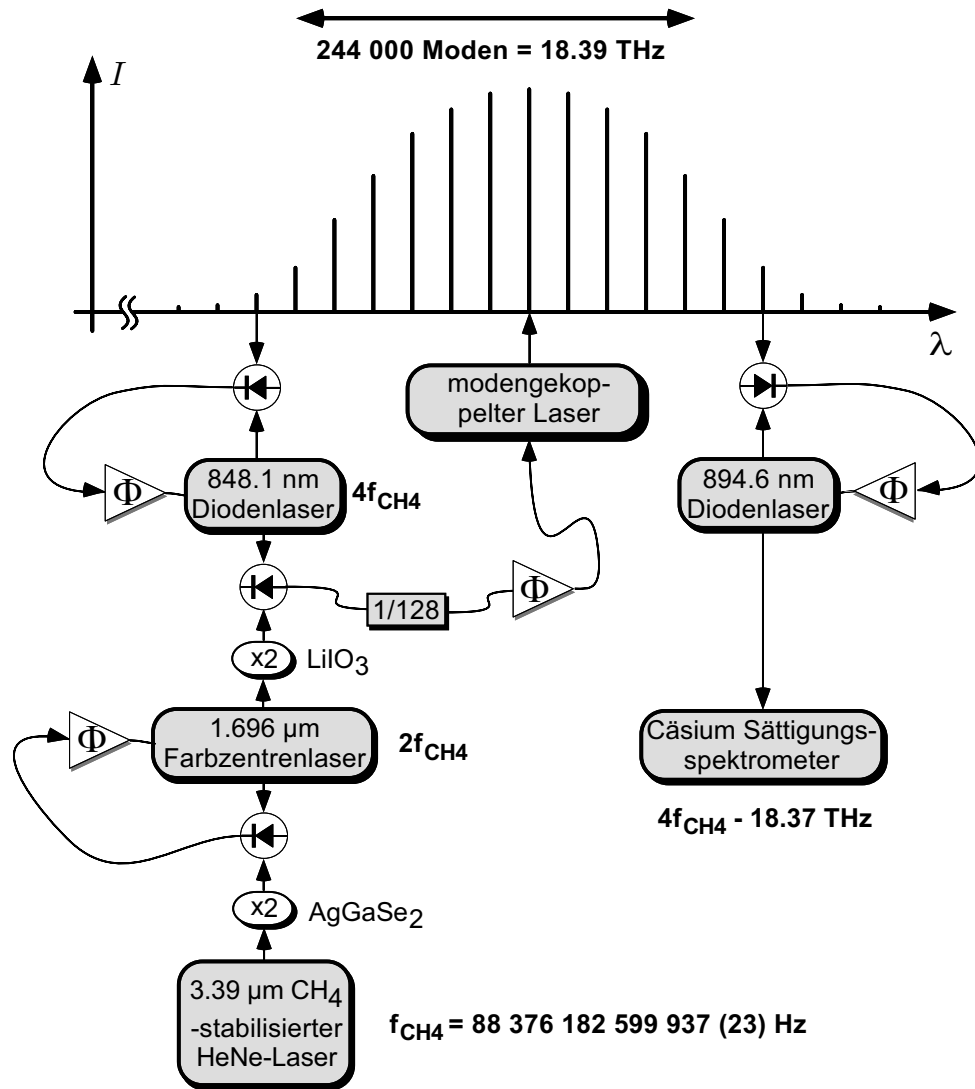


Fig. 5.2: Experimenteller Aufbau der Frequenzkette zur Messung der Cs- D_1 Linie. 244 000 longitudinale Moden des modengekoppelten Lasers überbrücken das Frequenzintervall zwischen der D_1 Linie bei 894.6 nm und 848.1 nm, der vierten Harmonischen der genau bekannten Frequenz eines Methan-stabilisierten He-Ne-Lasers.

Rausch-Verhältnis von > 60 dB in 400 kHz Auflösungsbandbreite von einem Radiofrequenz-Zähler (Hewlett-Packard, HP 53132A) gemessen. Dabei multipliziert sich jedoch die Systematik des Radiofrequenz-Zählers von spezifizierten 10^{-10} auf die Größe des Intervalls von 18 THz: sie beträgt dann etwa 2 kHz für die Frequenz der D_1 Linie. Für andere Experimente (Messung der Wasserstoff $1S$ - $2S$ Frequenz, Überprüfung der Gleichheit von Modenabstand und Pulswiederholrate) hätte dies eine inakzeptable Fehlerquelle dargestellt! Angesichts der Begrenzung

der Genauigkeit durch die Spektroskopie auf 40 kHz ist dieser Fehler jedoch in diesem Experiment vernachlässigbar. Alle in diesem Experiment benutzten Radiofrequenzquellen und -zähler benutzten als externe Zeitbasis eine lokale Cäsiumuhr (Hewlett-Packard, HP 5071A), so daß die Unsicherheit in der Bestimmung der D_1 Frequenz durch die Frequenzkette völlig vernachlässigt werden konnte.

Während der Messung wurde die in Abschnitt 4.9 beschriebene Methode zur Auffindung von durch in der Phasenregelung verlorengegangene Zyklen verfälschten Daten angewandt: Wenn eine der stabilisierten und gleichzeitig mit anderer Bandbreite gezählten Schwebungsfrequenzen um mehr als 0.5 Hz von der Sollfrequenz abwich, so wurde der betroffene Datenpunkt verworfen.

Um nun für die Spektroskopie die Frequenz der Laserdiode bei 894.6 nm kontinuierlich verändern zu können, variieren wir die Radiofrequenz f_{ref} des Lokalszillators, auf den die Schwebung zwischen der 848.1 nm-Laserdiode und der zweiten Harmonischen des Farbzentrenlasers phasenstabilisiert ist. Durch den Frequenzteiler mit einem Faktor 128 übersetzt, überträgt sich die Verschiebung auf den gesamten Frequenzkamm. Dadurch können mit der Laserdiode bei 894.6 nm Spektren der D_1 Linie aufgenommen werden. Im phasenstabilisierten Zustand berechnet sich damit die Frequenz dieser Laserdiode mit Hilfe von

$$f_{895} = 4f_{\text{HeNe}} - n f_r \pm 128 f_{\text{ref}} - 280 \text{ MHz} \quad (5.2)$$

aus den übrigen bekannten Frequenzen. Dabei bedeutet $f_{\text{HeNe}} = 88\,376\,182\,599\,937(23)$ Hz die Frequenz des kalibrierten He-Ne-Lasers [Ude97b], f_r die gemessene Pulswiederholrate und f_{ref} die Frequenz des veränderbaren Lokalszillators ($n = 244\,000$ Moden). Durch Austauschen der Eingangssignale an dem dazugehörigen Phasendetektor lassen sich beide Vorzeichen von f_{ref} in Gleichung 5.2 ausnutzen. Die Frequenzen der Lokalszillatoren aller anderen Phasenstabilisierungen gehen mit einer Frequenz von insgesamt 280 MHz in Gleichung 5.2 ein.

5.4 Das Sättigungsspektrometer

Für die Spektroskopie wurde ein klassisches Sättigungs-Spektrometer (Abbildung 5.3) mit einer 7.5 cm langen Cs-Dampfzelle der Firma Ophos Instruments Inc. aufgebaut, welches wir auch schon zur Bestimmung der Absolutfrequenz der Cs D_2 Linie bei 852 nm verwendet hatten [Ude97b, Ude00]. Damals hatten wir auch verschiedene andere Cs-Zellen zur Spektroskopie verwendet und keine nennenswerten Abweichungen der gemessenen Frequenzen voneinander feststellen können. In unserem Experiment waren Pump- und Probestrahl kollinear überlagert, mit gleicher vertikaler Polarisation. Eine optische Faser transportierte den Strahl von der Laserdiode zum Spektrometer und sorgte für ein gleichmäßiges Modenprofil. Aufgeweitet auf einen

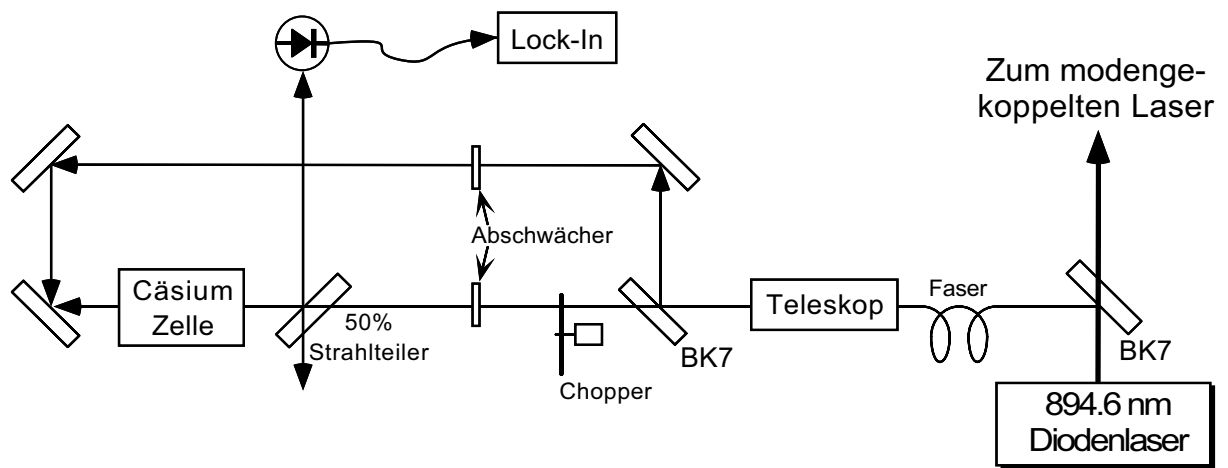


Fig. 5.3: Sättigungsspektrometer zur Doppler-freien Spektroskopie der D_1 Linie in Cäsium. Pump- und Probestrahl in kollinearer Anordnung mit etwa gleichen Intensitäten.

Radius von etwa 5 mm hatten die beiden Strahlen die gleiche Intensität von etwa $10 \mu\text{W}/\text{cm}^2$. Bei diesen Intensitäten weit unterhalb der Sättigungsintensität wird die Doppler-freie Auflösung der Spektrallinien nicht durch Sättigung der Absorption durch den Pumpstrahl erreicht. Der dominierende Effekt ist die Umverteilung der Besetzungszahl der Hyperfein- und Zeeman-Untersätze durch optisches Pumpen. Im wesentlichen werden Atome vom Pumpstrahl in das andere Grundzustands-Hyperfein-Niveau gepumpt, so daß die Absorption des Probestrahls vermindert ist. Mit Hilfe eines Zehhackers (engl. chopper), der periodisch den Pumpstrahl blockiert, und einem Lock-in-Verstärker kann die Differenz der Absorption detektiert werden. Da der Pumpstrahl nur auf die Absorption des Probestrahls Einfluß hat, wenn die Doppler-Verschiebung der angesprochenen Geschwindigkeitsklassen für beide Strahlen gleich ist, werden nur Atome detektiert, deren Geschwindigkeitskomponente in Strahlrichtung verschwindet. Die Methode liefert daher Spektren ohne Geschwindigkeits-Verbreiterung. Eine lesenswerte Analyse der verschiedenen an der „Sättigungs“-Spektroskopie beteiligten Prozesse und der auftretenden Linienformen findet man in [Sch94].

5.5 Ergebnisse der Messung

Mit dieser Doppler-freien Methode wurden die vier Hyperfein-Komponenten der D_1 Linie gemessen, die Übergänge von den Hyperfein-Niveaus $F_g = 3$ und $F_g = 4$ des Grundzustands $6S_{1/2}$ zu den Niveaus $F_e = 3$ und $F_e = 4$ des angeregten Zustands $6P_{1/2}$. Um Zeeman-Verschiebungen durch Streu-Magnetfelder zu minimieren, wurde die Cs-Zelle mit einer doppel-

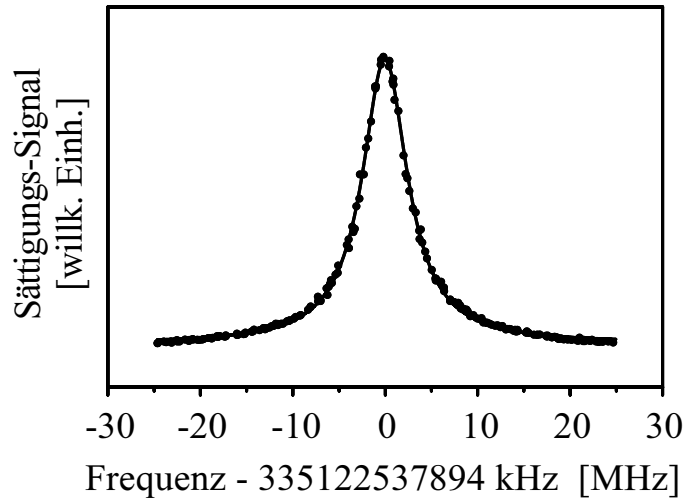


Fig. 5.4: Gemessene Hyperfein-Komponente des Übergangs $F_g = 4 \rightarrow F_e = 4$ der Cs- D_1 Linie. Die Absolutfrequenzen der Datenpunkte werden mit Gleichung 5.2, die Linienmitte aus der daran angepaßten Lorentz-Funktion bestimmt.

ten zylindrischen Abschirmung aus μ -Metall versehen. Die Feldkomponente in Strahlrichtung wurde mit $< 2 \mu\text{T}$ gemessen und es wird angenommen, daß die anderen Feldkomponenten viel kleiner sind. Aus den aufgenommenen Spektren bestimmen wir die Linienmitten durch Anpassung einer Lorentz-Funktion mit einem linearen Untergrund, wie in Abbildung 5.4 gezeigt. Die Halbwertsbreite der aufgenommenen Linien ist mit 6 MHz etwas größer als die natürliche Linienbreite von 5 MHz. Wir führen dies auf schnelle Phasenfluktuationen der phasenstabilisierten Laserdioden zurück. Da die benutzten digitalen Phasenstabilisierungen aufgrund großer erlaubter momentaner Phasenabweichungen ($\pm 32\pi$) mit einer relativ niedrigen Bandbreite auskommen, können höherfrequente Rauschkomponenten ungehindert die Kurzzeit-Linienbreite der stabilisierten Spektroskopie-Laserdiode vergrößern.

Bei der Aufnahme der Daten mußte beachtet werden, daß der verwendete Lock-in-Verstärker das Absorptions-Signal mit einer Integrations-Zeitkonstanten von 0.1 s mißt, daß also das Sättigungssignal gegenüber der Frequenzmessung um etwa diese Zeit verzögert ist. Um den damit verbundenen systematischen Fehler möglichst klein zu halten, wurde der Spektroskopie-Laser mehrmals mit 6 verschiedenen „scan“-Geschwindigkeiten und -richtungen über die Resonanz bewegt. Die Daten der jeweiligen Linienmitten sind in Abb. 5.5 dargestellt. Durch lineare Interpolation aller aufgenommenen Linienmitten der jeweiligen Hyperfein-Komponente wurde daraus der Einfluß der Zeitkonstante eliminiert.

Berechnet man zur Überprüfung der Konsistenz der Messungen die Hyperfein-Aufspaltung des Grundzustands, so erhält man gegenüber der Definition der SI-Sekunde um 36 kHz bei

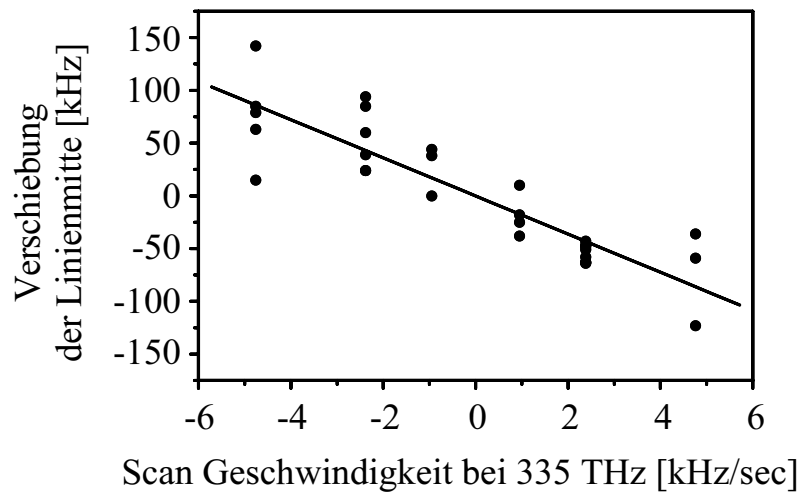


Fig. 5.5: Gemessene Linienmitten bei verschiedenen Geschwindigkeiten, mit denen der Laser über die Linie bewegt wurde. Dargestellt für die $F_g = 4 \rightarrow F_e = 4$ -Hyperfein-Komponente.

$F_e = 3$ und um 27 kHz bei $F_e = 4$ zu große Werte. Wir führen diese Diskrepanz auf systematische Effekte durch unzureichende Magnetfeld-Abschirmung zurück. Da die gyromagnetischen Verhältnisse für die Niveaus des Grundzustands und des angeregten Zustands verschieden sind, kommen Zeeman-Verschiebungen der unterschiedlichen am Übergang beteiligten M_F -Unterzustände zum Tragen. Wegen möglicher kleiner Imperfektionen der Polarisation und damit verbundenem asymmetrischen Ändern der Besetzungszahl der M_F -Niveaus durch den Pumplaser bewirken diese eine Verschiebung der Mittenfrequenz der Linie. Diese beträgt maximal 40 kHz für den ungünstigsten Fall der $F_g = 4 \rightarrow F_e = 3$ -Hyperfein-Komponente, wobei jedoch das Vorzeichen durch die Art der Asymmetrie der Polarisation bestimmt wird. Für die Übergänge mit $\Delta F = 0$ erwartet man weit kleinere Verschiebungen, da hier die Differenz der gyromagnetischen Verhältnisse nicht so groß ist und vor allem die unverschobenen $M_F = 0$ -Zustände am Übergang teilnehmen. Um die auftretenden Verschiebungen möglichst weitgehend zu korrigieren, addieren wir 36 kHz zu dem Wert des $F_g = 4 \rightarrow F_e = 3$ -Übergangs und subtrahieren 27 kHz vom Wert des $F_g = 3 \rightarrow F_e = 4$ -Übergangs, wodurch der definierte Wert der Grundzustands-Hyperfeinaufspaltung erreicht wird. Die daraus resultierenden Frequenzen für die vier Hyperfeinkomponenten sind in Tabelle 5.1 zusammengefaßt.

Die Frequenz des Hyperfein-Zentroids, des hypothetischen Übergangs bei „ausgeschalteter“ Hyperfein-Wechselwirkung berechnet sich als $f_{D1} = 7/16 f_{3 \rightarrow 3} + 9/16 f_{4 \rightarrow 4}$. Wegen $J = 1/2$ für Grund- und angeregten Zustand existiert hier nur der magnetische Dipolterm der Hyperfein-Wechselwirkung, so daß die Zentroid-Frequenz durch die Differenz der (mit der M_F -Multiplizität gewichteten) Schwerpunkte der beiden Zustände gegeben ist. Aufgrund der

Hyperfein-Komponente	Frequenz (Unsicherh.: 41 kHz)
$F_g = 3 \rightarrow F_e = 3$	335 120 562 838 kHz
$F_g = 3 \rightarrow F_e = 4$	335 121 730 526 kHz
$F_g = 4 \rightarrow F_e = 3$	335 111 370 206 kHz
$F_g = 4 \rightarrow F_e = 4$	335 112 537 894 kHz
Zentroid	335 116 048 807 kHz

Tabelle 5.1: *Ergebnisse der Messungen der Absolutfrequenzen der Cs D_1 Hyperfein-Komponenten und Hyperfein-Zentroid-Frequenz (hypothetischer Übergang ohne den Einfluß der Hyperfein-Wechselwirkung).*

gleichen F -Quantenzahlen in Grund- und angeregtem Zustand gehen bei der Berechnung nur die Übergangsfrequenzen von $F_g = 3 \rightarrow F_3 = 3$ und $F_g = 4 \rightarrow F_3 = 4$ ein. Die Zentroid-Frequenz wird also von der gemachten Korrektur der Übergänge $F_g = 3 \rightarrow F_3 = 4$ und $F_g = 4 \rightarrow F_3 = 3$ nicht berührt, wohl aber die Hyperfein-Aufspaltung des angeregten Zustands.

Die systematische Unsicherheit der Zentroid-Frequenz kann man mit der maximal möglichen Zeeman-Verschiebung auf 40 kHz abschätzen, die Unsicherheit der Aufspaltung des angeregten Zustands mit dem doppelten Wert, da die Systematiken sich aufaddieren können. Andere systematische Effekte wie der AC-Stark-Effekt, Veränderungen der Linienform durch Lichtdruck [Gri89] oder kleine Beiträge von selektiver Reflexion, Druck-Verschiebungen [Vul93] und Systematik des Zählers bei der Messung der Pulsrepetitionsrate liefern wesentlich kleiner Beiträge. Die statistische Unsicherheit der Messungen beträgt etwa 10 kHz. Damit erhält man folgende Ergebnisse für die Zentroid-Frequenz

$$f_{D1} = 335\,116\,048\,807(41) \text{ kHz} \quad (5.3)$$

und

$$f_{6P_{1/2}}^{\text{HFS}} = 1\,167\,688(81) \text{ kHz} \quad (5.4)$$

für die Hyperfein-Aufspaltung des angeregten Zustands. Diese Werte stimmen mit Werten aus früheren Veröffentlichungen innerhalb deren Unsicherheit gut überein: $f_{D1} = 335\,116\,062(15)$ MHz [Web87] und $f_{6P_{1/2}}^{\text{HFS}} = 1\,167.54(32)$ MHz [Raf97].

Mit der relativen Masse des ^{133}Cs -Atoms, $m_{\text{Cs}} = 132.905\,451\,931(27)$ u, die vor kurzem genauer bestimmt wurde [Bra99], der relativen Proton-Masse $m_p = 1.007\,276\,466\,30(50)$ u [Fil94], dem Proton-Elektron-Massenverhältnis $m_p/m_e = 1836.152\,666\,5(40)$ [Far95] und einer vorläufigen Messung der Cäsium-Rückstoßfrequenz $f_{\text{rec}} = 1875.784\,83(11)$ Hz [You97], läßt sich ein neuer Wert für die Feinstrukturkonstante gemäß Gleichung 5.1 angeben: $\alpha^{-1} =$

137.035 992 2(40). Da bei der Messung der Rückstoßfrequenz ein Ramanübergang auf den $F_g = 3 \rightarrow F_e = 3$ und $F_g = 4 \rightarrow F_e = 3$ Hyperfein-Komponenten verwendet wird [You97], geht dabei das arithmetische Mittel der Frequenzen dieser beiden Komponenten, $f_{D1} = 335\,115\,966\,522(41)$ kHz, in Gleichung 5.1 ein. Dieser Wert ist aufgrund noch nicht vollständig verstandener systematischer Effekte bei der Messung der Rückstoßfrequenz, die die Genauigkeit von α begrenzt, noch als vorläufig zu betrachten. Zukünftige genauere Messungen von f_{rec} werden direkt von der Genauigkeit der Messung der Cs D_1 Linie profitieren. Von dem genauesten bekannten Wert aus der Messung des gyromagnetischen Verhältnisses $g - 2$ [Kin96] des freien Elektrons weicht der berechnete Wert von α^{-1} um 1.8 kombinierte Standardabweichungen ab. Er ist im Vergleich mit anderen experimentellen Bestimmungen von α in Abbildung 5.1 dargestellt.

Kapitel 6

Phasenkohärenter Vergleich von Vakuum-UV-Frequenzen und Radiofrequenzen: Der $1S$ - $2S$ Übergang in Wasserstoff.

Mit der Messung der Cs D_1 Linie war es nun gelungen, den Femtosekundenlaser zum ersten Mal für eine optische Frequenzmessung einzusetzen. Durch den Frequenzkamm war damit, ausgehend von der erzeugten Referenzfrequenz bei 848.1 nm, der gesamte Bereich zwischen ca. 810 nm und 895 nm der Frequenzmessung zugänglich geworden. Ein direkter Vergleich der Frequenzen mit der genauesten Frequenz-Referenz, einem Cäsium-Frequenz-Standard, war dadurch jedoch noch nicht möglich: Als Referenz diente immer noch der CH_4 -stabilisierte He-Ne-Laser [Bag97a], dessen Kalibration den Einsatz einer aufwendigen harmonischen Frequenzkette an der Physikalisch-Technischen-Bundesanstalt in Braunschweig erforderte. Bei der Messung der Frequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in Wasserstoff konnten wir zum ersten Mal einen solchen direkten Vergleich durchführen.

6.1 Kurzfassung

In dem hier beschriebenen Experiment konnte erstmals eine neue Art von Frequenzkette demonstriert werden, die durch Messung des Frequenzintervalls zwischen zwei verschiedenen Harmonischen (bzw. Subharmonischen) einer Laserfrequenz einen direkten Vergleich von optischen Frequenzen und Radiofrequenzen erlaubt. Dabei wurde ein Intervall von 45.2 THz mit dem Frequenzkamm des modengekoppelten Lasers überbrückt. Mit Hilfe dieser neuen Frequenzkette

konnte, in Zusammenarbeit mit Markus Niering (Wasserstoff-Spektroskopie), die Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in Wasserstoff bei 121.6 nm mit einer Genauigkeit von 1.5×10^{-13} zu $f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187.29(37)$ kHz bestimmt werden. Dadurch wurde die beste vorhergehende Bestimmung der $1S$ - $2S$ Frequenz [Ude97a] und sogar die kürzliche rekordbrechende Messung der Kalzium-Interkombinationslinie [Rie99] an Präzision übertroffen. Die Genauigkeit war dabei durch die Stabilität der benutzten Radiofrequenz-Referenz (Cs-Atomuhr, Modell Hewlett-Packard 5071A) begrenzt. Die Ergebnisse dieses Experiments wurden bei „Physical Review Letters“ veröffentlicht (Anhang E).

In einem nachfolgenden Experiment, welches detailliert in der Dissertation von Markus Niering [Nie00b] beschrieben und bei „Physical Review Letters“ zur Veröffentlichung eingereicht ist, konnte mit demselben experimentellen Aufbau durch Vergleich des Übergangs mit einer Cäsium-Fontänenuhr [San99], in Zusammenarbeit mit der Gruppe von A. Clairon, Paris, die Genauigkeit auf 1.8×10^{-14} gesteigert werden. Dieser Wert stellt jetzt die am präzisesten vermessene optische Frequenz dar.

6.2 Frequenzmessungen am Wasserstoff und QED-Tests

Der Doppler-freie Zweiphotonen-Übergang des $1S$ - $2S$ Intervalls in Wasserstoff (Abbildung 6.1) mit einer Frequenz von 2 466 THz ($\lambda = 121.6$ nm) und einer natürlichen Linienbreite von nur 1.3 Hz bietet mit einer Güte von $\Delta\nu/\nu \approx 5 \times 10^{-16}$ ein herausforderndes Potential für die Präzisions-Spektroskopie. Die Zweiphotonen-Anregung in den metastabilen $2S$ Zustand gelang erstmals T. W. Hänsch und Mitarbeitern 1974 mit Hilfe eines gepulsten Lasers [Hän74] und im Laufe der Jahre konnte die spektroskopische Auflösung des Übergangs (volle Halbwertsbreite der spektroptierten Linie dividiert durch ihre Absolutfrequenz) auf etwa 8×10^{-13} gesteigert werden [Hub99, Hub97]. Seine Linienform und die Systematiken des Spektrometers sind so weit verstanden, daß es möglich ist, die ungestörte $1S$ - $2S$ Frequenz relativ zu den aufgenommenen Spektren mit einer Genauigkeit von 1.5×10^{-14} zu bestimmen [Hub99, Hub97]. Mit der nun erreichten Präzision in der Frequenzmessung von 1.8×10^{-14} steht der Weg zu einem optischen Frequenzstandard höchster Präzision offen, dessen Frequenz aufgrund des relativ ausgereiften theoretischen Verständnisses direkt auf einige wenige Naturkonstanten zurückführbar ist.

Die gegenüber der letzten Frequenzmessung [Ude97a] um etwa eine Größenordnung verbesserte Präzision kann einen Beitrag bei Untersuchungen zur Konstanz von Naturkonstanten [Dzu99] oder der CPT-Invarianz zwischen Materie und Antimaterie [Ead99] liefern. Aber vor allem die Frage nach der Gültigkeit der QED gebundener Systeme, mit der die Spektroskopie am Wasserstoff schon immer eng verbunden war, steht aufgrund neuer überraschender theoretischer

Entdeckungen (z. B. [Mal98]) weiter im Mittelpunkt des Interesses.

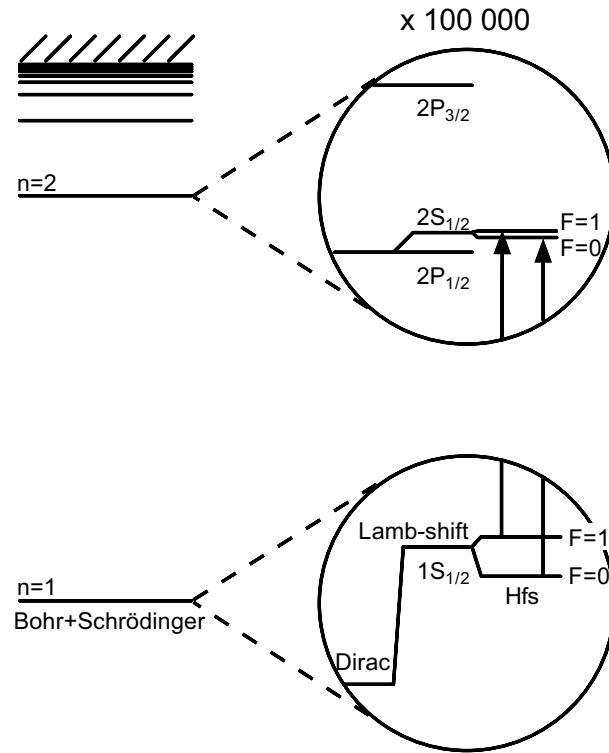


Fig. 6.1: Energieniveaus im Wasserstoffatom.

Die hohe Präzision, mit der die Frequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs bestimmt werden kann, eröffnet den Zugang zur $1S$ Lamb-Verschiebung (siehe Abbildung 6.1), die als größter QED-Beitrag im Wasserstoffatom den besten Angriffspunkt für QED-Tests bietet. Die Lamb-Verschiebungen der einzelnen Energieniveaus sind dabei keine direkt meßbaren Größen, sondern sind als Differenz der gemessenen Energien der Niveaus (nach Bereinigung der mit hoher Genauigkeit gemessenen Hyperfeinstruktur) zu den analytisch aus der Dirac-Gleichung berechenbaren Energien definiert¹. Diese Verschiebungen kommen in erster Linie durch QED-Effekte zustande, die in Wasserstoff-ähnlichen Atomen mit $(Z\alpha)^4/n^3$ (Kernladungszahl Z) skalieren — vor allem durch die Einschleifen-Korrekturen „Selbstenergie“ und „Vakuumpolarisation“ — und betreffen dabei in der Hauptsache S Zustände (Verhältnis der Verschiebung $2S$ zu $2P$ etwa 1:100). Jedoch spielen auch Rückstoßterme eine Rolle, die in der Dirac-Gleichung nicht vollständig durch

¹Die klassische Lamb-Verschiebung ist dagegen die von W. W. Lamb und R. C. Retherford 1947 entdeckte Energie-Aufspaltung zwischen dem $2P_{1/2}$ und $2S_{1/2}$ Niveau [Lam47], im wesentlichen durch die $2S$ Lamb-Verschiebung gegeben.

Einführung einer reduzierten Masse berücksichtigt werden können, sowie Einflüsse der endlichen Ausdehnung der Ladungsverteilung des Protons auf die Energieniveaus. Eine Einführung in die theoretischen Grundlagen der Lamb-Verschiebung gibt [Sap90], eine Übersicht auf neuem Stand ist in [Pac96] zu finden. Zur genauen Definition der Lamb-Verschiebung vergleiche [Gro98, Hub97, Ude97b].

Um aus der Messung des $1S$ - $2S$ Übergangs die $1S$ Lamb-Verschiebung zu bestimmen, muß mindestens eine weitere gemessene Übergangsfrequenz zwischen angeregten Niveaus herangezogen werden: Nur aus der Kombination der beiden Messungen können dann gleichzeitig die Lamb-Verschiebung und die Rydbergkonstante bestimmt werden, die beide mit etwa gleicher Unsicherheit in den Bestimmungsgleichungen vertreten sind. Beiträge der Lamb-Verschiebungen höherer Niveaus sind dabei entweder klein und können präzise berechnet werden oder mit dem $1/n^3$ -Skalierungsgesetz auf die $1S$ Lamb-Verschiebung zurückgeführt werden [Kar97].

Durch die letzte Messung der Frequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs [Ude97a] mit einer Genauigkeit von 3.4×10^{-13} in Kombination mit Frequenzmessungen des $2S_{1/2} - 8S_{1/2}/D_{5/2}$ Übergangs [Bea97] und des $2S_{1/2} - 12D_{5/2}$ Übergangs in Paris [Sch99] und einiger weiterer früherer Messungen angeregter Übergänge (vergleiche [Ude97a]) konnte die $1S$ Lamb-Verschiebung zu

$$L_{1S} = 8172.876(29) \text{ MHz} \quad (2S-8S/D) , \quad (6.1)$$

beziehungsweise

$$L_{1S} = 8172.837(22) \text{ MHz} \quad (2S-12D) \quad (6.2)$$

festgelegt werden.

Die Genauigkeit in der Bestimmung der $1S$ Lamb-Verschiebung ist zur Zeit begrenzt durch die Messung der $2S$ - nS/D Zustände mit einer Unsicherheit von etwa 8×10^{-12} . Eine Neubestimmung mit Hilfe der in dieser Arbeit vorgestellten verbesserten Messung des $1S$ - $2S$ Übergangs würde daher deren Wert und dessen Unsicherheit nur marginal berühren. Eine von Prof. D. Kleppner am Massachusetts Institute of Technology geplante Messung von Übergängen zwischen angeregten Zuständen an ultrakalten Wasserstoffatomen [Kle] könnte jedoch aufgrund längerer Wechselwirkungszeiten gegenüber dem Experiment am Atomstrahl in Paris eine wesentlich verbesserte Genauigkeit haben, was sich direkt in der Genauigkeit von Lamb-Verschiebung und Rydberg-Konstante niederschlagen würde. Gleichzeitig zu den Verbesserungen für QED-Tests würde dabei die Bedeutung der Rydberg-Konstanten, die mit $R_\infty = 10\,973\,731.568\,516(84) \text{ m}^{-1}$ [Sch99] die am genauesten bekannte Konstante der Naturwissenschaften ist, als fest fixierter „Angelpunkt“ im Unsicherheits-Abgleich des Systems der Naturkonstanten [Cod87] noch steigen.

Auf theoretischer Seite wurden in letzter Zeit viele QED-Beiträge in höherer Ordnung Störungstheorie von verschiedenen Gruppen berechnet. Jedoch ist die Frage nach der Größe des wichtigsten Terms, der Zweischleifen-Selbstenergie, noch nicht zufriedenstellend beantwortet. Vor einigen Jahren führten die ersten vollständigen Berechnungen der Zweischleifen-Korrekturen [Pac94, Eid95] zu überraschenden Effekten: Terme zweiter Ordnung in $Z\alpha$ waren von derselben Größenordnung wie Terme erster Ordnung, die aufgrund des störungstheoretischen Ansatzes um etwa $1/Z\alpha$ größer sein sollten. Vor kurzem wurde gezeigt, daß eine nicht-perturbative Behandlung zu wesentlich größeren Abweichungen führt [Mal98]. Diese Ergebnisse könnten ein Hinweis sein, daß der störungstheoretische Ansatz möglicherweise bei höheren Ordnungen zusammenbricht. Ein Vergleich mit dem Experiment läßt daher wichtige Aufschlüsse über diese offenen Fragen erwarten, bis hin zu neuen Einblicken in die perturbative Struktur der QED.

Im Moment werden jedoch Vergleiche auf dem Genauigkeits-Niveau der Zweischleifen-Korrekturen (etwa 10^{-6} der Lamb-Verschiebung) durch die Kerngrößenbeiträge aufgrund einer zu ungenauen Kenntnis des Proton-Ladungsradius verhindert. Obwohl diese Korrekturen nur einen winzigen Anteil (etwa $1/7000$) der $1S$ Lamb-Verschiebung ausmachen, limitieren sie die Präzision des theoretischen Werts auf ein Niveau von etwa 10^{-5} . Ein Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit dem (rein perturbativ berechneten) theoretischen Wert,

$$L_{1S,theo} = 8172.797(40) \text{ MHz} , \quad (6.3)$$

unter Benutzung des Proton-Ladungsradius $r_p = 0.862(12) \text{ fm}$ [Sim80], zeigt keine signifikanten Diskrepanzen. Andere Literaturwerte jedoch führen zu Abweichungen um viele kombinierte Standardabweichungen (siehe Bild 6.2).

Andererseits kann unter der Annahme, daß die QED alle Beiträge der Lamb-Verschiebung korrekt vorhersagt, und daß Unsicherheiten durch nicht berechnete Beiträge richtig abgeschätzt wurden, aus dem experimentellen Wert ein Proton-Ladungsradius von $r_p = 0.890(14)$, für den neueren Wert $r_p = 0.877$ (mit ähnlicher Unsicherheit) bestimmt werden. Ein Übersichtsartikel von S. Karshenboim [Kar99] beschäftigt sich mit der Problematik der Messungen des Proton-Ladungsradius.

Für einen Test der QED gebundener Zustände auf dem Niveau der Zweischleifen-Korrekturen ist jedoch dringend eine neue, genauere Bestimmung des Proton-Ladungsradius notwendig. Eine solche wird von F. Kottmann, D. Taqu und Mitarbeitern am Paul-Scherrer-Institut, Schweiz, vorbereitet. Mit Hilfe einer Messung der $2S$ - $2P$ Lamb-Verschiebung an myonischem Wasserstoff (μ^-p^+), bei der die Kerngrößenkorrektur aufgrund des schwereren Myons etwa 2% der Verschiebung beträgt, soll der Ladungsradius des Protons mit einer Genauigkeit von 10^{-3} bestimmt werden [Taq99, Kot98]. Bei der erwarteten Genauigkeit wird ein Vergleich zwischen Theorie und Experiment in Zukunft erst auf dem Niveau von 3×10^{-7} durch die Kerngrößen-

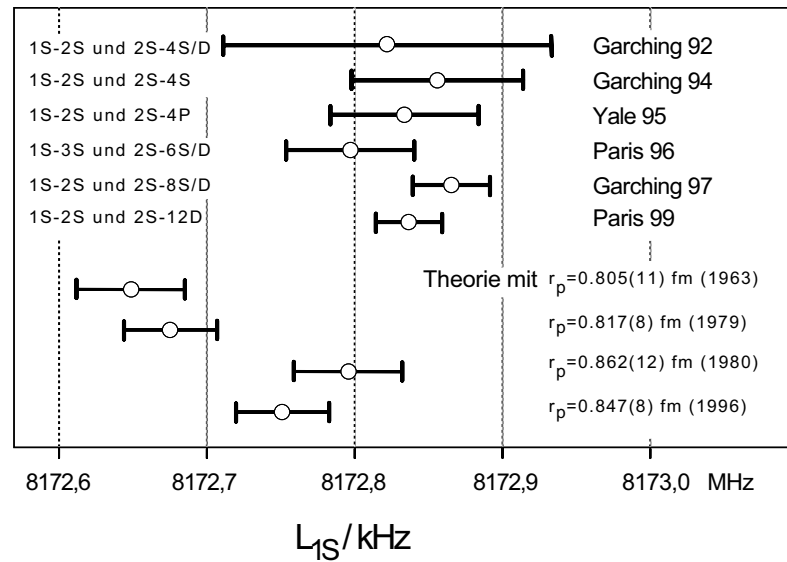


Fig. 6.2: Vergleich verschiedener experimentell gemessener Werte der $1S$ Lamb-Verschiebung in Wasserstoff [Wei92, Wei94, Ber95, Bou96, Ude97a, Bea97, Sch99]. Für den theoretisch perturbativ bestimmten Wert wurden verschiedene experimentell gemessene Werte des Proton-Ladungsradius eingesetzt [Han63, Aki79, Sim80, Mer96].

effekte begrenzt, was aussagekräftige QED-Tests auf dem Zweischleifen-Niveau ermöglichen wird.

6.3 Die Frequenzkette zur Messung des $1S$ - $2S$ Übergangs

Bei dem hier vorgestellten Experiment wurde eine neuartige Frequenzkette verwendet, welche die Messung der Frequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs auf die Messung einer 45.2 THz großen Frequenzlücke im nahen Infrarot-Bereich zurückführt, die mit Hilfe des Femtosekunden-Frequenzkamms überbrückt wurde.

Das angewandte Prinzip soll — erst einmal in stark vereinfachter Form — anhand des in der Einleitung gezeigten Schemas der verwendeten Frequenzkette in Abbildung 1.1 erklärt werden. In mehreren nichtlinearen Prozessen wird, wie im Experiment zur Messung der Cs D_1 Linie (Kapitel 5), die vierte Harmonische der Frequenz f eines stabilisierten He-Ne-Lasers erzeugt. Mit Hilfe eines optischen Frequenzintervall-Teilers (Abschnitt 4.7) kann man von $4f$ nach $7f$ extrapolieren, zur Frequenz des Lasers, der für die Wasserstoff-Spektroskopie verwendet wird. Durch Messung der Frequenzlücke von etwa 44 THz zwischen $3.5f$ und $4f$ mit dem Frequenzkamm des modengekoppelten Lasers wird $f/2 = 4f - 3.5f$ bestimmt und dadurch die Verbind-

zung zwischen Radiofrequenzen und optischen Frequenzen hergestellt, da mit der Bestimmung von f sämtliche Frequenzen des Aufbaus festgelegt sind.

Dieser Prototyp einer auf Messung von Frequenzintervallen beruhenden Frequenzkette ist aus der schon existierenden Garchinger harmonischen Frequenzkette entstanden, mit der 1997 die letzte Bestimmung der $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz durchgeführt worden war [Ude97a,Ude97b]. Damals diente der He-Ne-Laser [Bag97a] als sekundärer Frequenzstandard und war das die Genauigkeit der Messung limitierende Element. Er dient nun nurmehr noch als „optisches Schwungrad“, d. h. er zeichnet sich durch sehr gute Stabilität (im Kurzzeit-Bereich und bis hin zu mehreren Stunden) aus. Der Frequenzstandard ist jetzt eine kommerzielle Cs-Atomuhr (Hewlett-Packard, Modell HP 5071A), die ständig mit dem Zeitsignal eines GPS-Empfängers (engl. Global Positioning System) kalibriert wird, wie in Anhang D näher beschrieben. In dem zweiten darauffolgenden Experiment ist die Radiofrequenz-Referenz eine Cs-Fontänenuhr [San99, Ghe96], einer der präzisesten primären Frequenz-Standards. Alle Radiofrequenzquellen und -zähler benutzen als Zeitbasis das Ausgangs-Signal der Atomuhr. Die Pulsrepetitionrate des Femtosekundenlasers, auf eine Radiofrequenz phasenstabilisiert, überträgt daher deren Genauigkeit und Stabilität auf alle optischen Frequenzen der Kette.

Der tatsächliche experimentelle Aufbau ist etwas komplizierter als oben dargestellt und soll anhand von Abbildung 6.3 erläutert werden. Aufgrund einer zufälligen Koinzidenz fällt die 28. Harmonische des He-Ne-Lasers (in der Abbildung links unten) bis auf eine kleine Frequenzlücke von ca. 8 THz mit der Frequenz des $1S$ - $2S$ Intervalls zusammen. Der Farbstofflaser, dessen zweite Harmonische den Zweiphotonen-Übergang spektroskopiert (rechts unten), oszilliert daher bei der Frequenz von $7f - 2\Delta f$. Die hier auftretende „kleine“ Frequenzlücke (mit $\Delta f \approx 1$ THz) von der siebten Harmonischen des He-Ne-Lasers, die in Abbildung 1.1 zur Vereinfachung nicht gezeigt ist, stellte jedoch in früheren Experimenten die hauptsächliche Schwierigkeit bei der Messung der $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz dar [Ude97a]. Wie in der Messung der Cs D_1 Linie wird hier die vierte Harmonische des He-Ne-Lasers in zwei nicht-linearen Schritten mit Hilfe eines Farbzentrenlasers als Transfer-Oszillator erzeugt, wobei ein He-Ne-Laser mit heißer Kathode ausreichende Leistung (10 mW) für den ersten Frequenzverdopplungsschritt zur Verfügung stellt. Ein optischer Frequenzintervall-Teiler (bestehend aus den in Abbildung 6.3 an das Summen-Symbol angrenzenden Laseroszillatoren) für das sehr große Intervall zwischen $3.39 \mu\text{m}$ und 486 nm (Anhang A) erzeugt aus den Frequenzen f des He-Ne-Lasers und $7f - 2\Delta f$ des Farbstofflasers die exakte Mittenfrequenz $4f - \Delta f$ bei 851 nm . Deren Abweichung Δf von $4f$ kann nun mühelos mit den Moden des Frequenzkamms überbrückt werden (Details siehe unten). Dadurch ist die phasenkohärente Verbindung zwischen dem He-Ne-Laser und dem Spektroskopie-Laser hergestellt.

Um nun die Absolutfrequenz von f und damit von allen im Experiment auftretenden optischen Frequenzen zu bestimmen, vermessen wir die Größe des optischen Frequenzintervalls

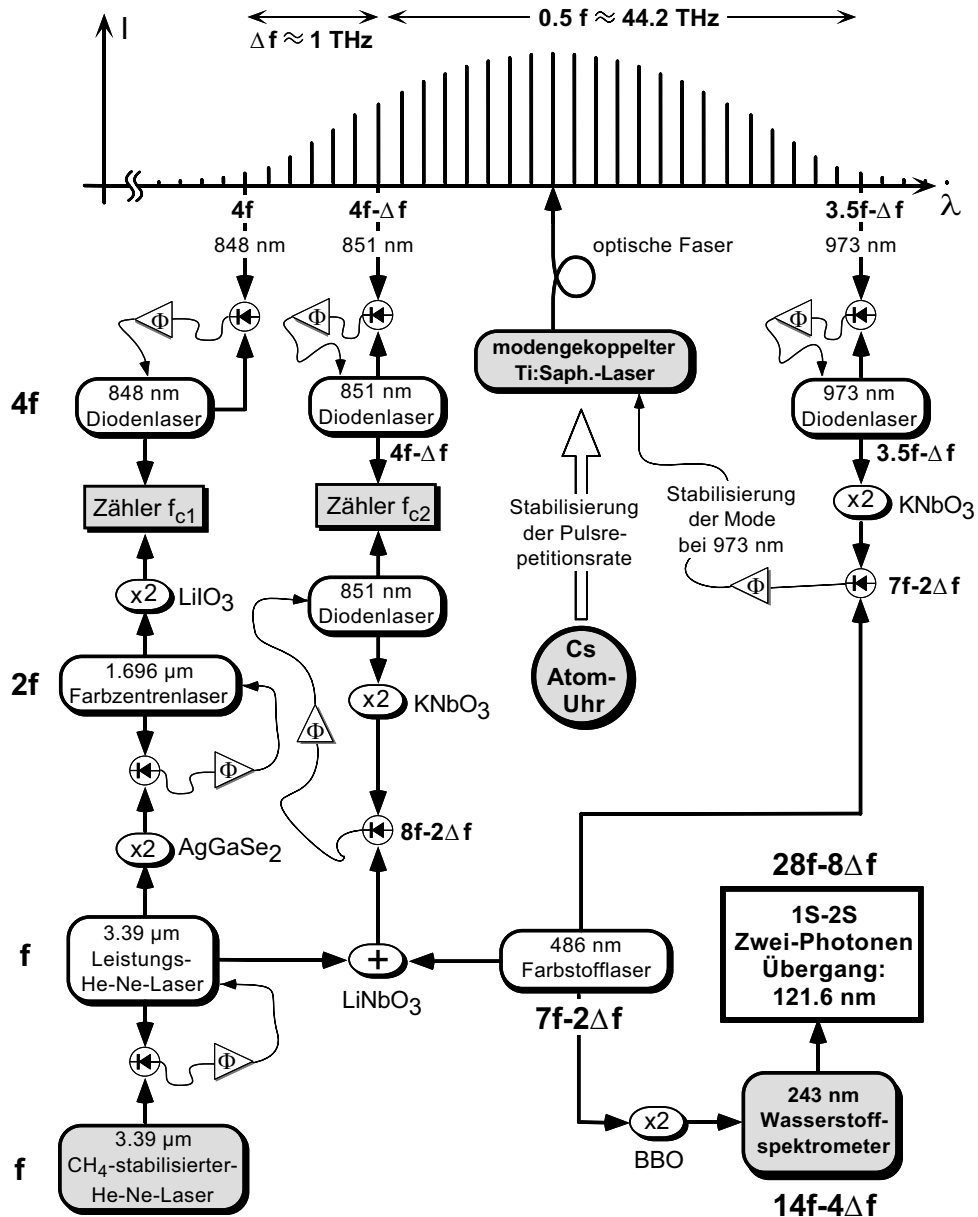


Fig. 6.3: Detaillierteres Schema der neuen Frequenzkette zur Messung der $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz in Wasserstoff, basierend auf der Messung großer optischer Intervalle mit einem modengekoppelten Laser. Im Vergleich zu Abbildung 1.1 taucht hier noch eine kleine zusätzliche Lücke Δf bei $\lambda = 850$ nm auf, die ebenfalls mit Moden des Femtosekundenlasers überbrückt wird. Werden die beiden auftretenden Frequenzlücken der Größe $0.5f$ und Δf mit dem modengekoppelten Laser gemessen, dann sind alle Frequenzen des Aufbaus bekannt, inklusive des $1S$ - $2S$ Intervalls mit einer Absolutfrequenz von $28f - 8\Delta f = 2\,466$ THz.

von $0.5f \approx 44.2$ THz zwischen der Mittenfrequenz $4f - \Delta f$ des Intervall-Teilers und der zweiten Subharmonischen des Farbstofflasers bei $3.5f - \Delta f$ (973 nm) mit Hilfe der Moden des Femtosekundenlasers. Für die Messung der beiden Intervalle muß dabei insgesamt eine Frequenzlücke von 45.2 THz überbrückt werden. Da die spektrale Bandbreite der Pulse von 73 fs Dauer aus dem Laser Mira 900 (Coherent, Inc.) nicht ausreichend dafür ist, koppeln wir den Laserstrahl, wie in Abschnitt 4.3 beschrieben, durch eine 40 cm lange Ein-Moden-Faser, die das Spektrum durch Selbst-Phasenmodulation verbreitert, so daß 45.2 THz überbrückt werden können.

Der zentrale Punkt für den phasenkohärenten Vergleich von Radiofrequenzen und optischen Frequenzen ist die Stabilisierung des Femtosekundenlasers (Details siehe Abschnitt 4.2): Um die Genauigkeit der 10 MHz Radiofrequenz-Referenz der Cs-Atomuhr in einem Schritt auf das Intervall von 45.2 THz zu übertragen, phasen-stabilisieren wir die 200. Harmonische der Pulsrepetitionsrate, die mit einer schnellen Schottky-Photodiode (New Focus, Modell 1002) detektiert wird, auf ein 15.2 GHz-Signal aus einem Mikrowellen-Synthesizer (Hewlett-Packard, Modell HP 83623A). Ein Mikrowellenmischer dient dabei als analoger Phasendetektor, ein Integrator generiert aus dessen DC-Ausgangssignal ein Regelsignal, mit dem mit einer niedrigen Bandbreite von einigen 100 Hz die Verkippung des Resonator-Endspiegels gestellt wird (Abschnitt 4.2).

Zusätzlich zum Modenabstand stabilisieren wir eine ausgewählte Mode des Frequenzkamms, so daß sie phasenkohärent mit dem Farbstofflaser verbunden ist: Das Signal bei $3.5f - \Delta f$ liefert eine Laserdiode bei 973 nm mit etwa 15 mW Leistung (in Abbildung 6.3 rechts oben), deren zweite Harmonische in einem B-geschnittenen KNbO_3 -Kristall im einfachen Durchgang (mit etwa $1 \mu\text{W}$) erzeugt wird und auf die Frequenz des Farbstofflasers stabilisiert wird. Gleichzeitig wird dabei die Frequenz einer Mode bei 973 nm auf die Frequenz dieser Laserdiode phasenstabilisiert, wodurch die absolute Position des Modenkamms im Frequenzraum, wie in Abschnitt 4.2 beschrieben, fixiert ist. Technisch wird dies wie bei der Messung der Cs D_1 Linie durch zwei verschachtelte Phasenstabilisierungen verschiedener Bandbreite realisiert (siehe Abbildung 6.3). Eine schnelle Regelung (digitaler Phasenregelkreis [Pre95a] mit einigen 100 kHz Regelbandbreite) stabilisiert die Laserdiode auf die ausgewählte Mode des Frequenzkamms bei $3.5f - \Delta f$. Dann wird das Schwebungssignal zwischen ihrer zweiten Harmonischen und dem Farbstofflaser benutzt, um mit niedriger Bandbreite (maximal 10 kHz) die Länge des Femtosekundenlaser-Resonators zu stellen und damit dieses Schwebungssignal zu phasenstabilisieren (analog zu Kapitel 5 mit Hilfe eines 1:128-Frequenzteilers). Durch die gemeinsame Stabilisierung von Modenabstand und absoluter Position überzieht der Frequenzkamm in diesem Experiment das Intervall zwischen 848 nm und 973 nm mit einem Gitter von Referenz-Frequenzen, so daß sich — bereits mit diesem Laser relativ schmaler spektraler Bandbreite — jede beliebige Frequenz in diesem großen Intervall mit der Radiofrequenz-Genauigkeit einer

Cäsium-Uhr messen läßt.

Auch in diesem Experiment sind alle benutzten Stabilisierungen von Laserfrequenzen digitale Phasenstabilisierungen (Abschnitt 4.5). Im Prinzip läßt sich daher während der Messung zu jedem Zeitpunkt die Beziehung zwischen der Phase der Cs-Uhr und dem Spektroskopie-Laser angeben: die Messung ist phasenkohärent. Um die korrekte Funktion der Phasenregelkreise während der Registrierung der Daten sicherzustellen, werden, wie in Abschnitt 4.5 beschrieben, alle sieben stabilisierten Schwebungssignale mit Radiofrequenz-Zählern (Hewlett-Packard, HP 53131A) mit einer anderen Filterbandbreite (10 MHz Bandpaß) als für die Phasendetektoren mitgezählt. Nur Daten, bei denen die Abweichung aller Zähler von der Sollfrequenz weniger als 0.5 Hz beträgt (bei einer Torzeit von 1 s), werden als gültig in die Auswertung übernommen.

Um die Größe der beiden Frequenzlücken $0.5f$ und Δf zu bestimmen, zählen wir elektronisch die Schwebungsfrequenzen f_{c1} und f_{c2} bei $4f$ und $4f - \Delta f$ zwischen den Moden des Kamms und der vierten Harmonischen des He-Ne-Lasers bzw. der Laserdiode bei 851 nm, welche die Mittenfrequenz des Intervall-Teilers erzeugt. Wie bereits in Abschnitt 4.9 (Fußnote) beschrieben, ist für diese Schwebungssignale ein im Vergleich zu den phasenstabilisierten Schwebungen (≥ 30 dB in 400 kHz Bandbreite) höheres Signal-zu-Rausch-Verhältnis von mindestens 40 dB in 400 kHz Bandbreite notwendig, um korrektes Zählen des Signals sicherzustellen, da hier die bei stabilisierten Schwebungen vorhandene Überprüfungsmöglichkeit fehlt. Um dies zu gewährleisten, zählen wir die Schwebungssignale nicht direkt mit den Moden des Kamms, sondern mit zwei Laserdioden, die auf die entsprechen Moden des Frequenzkamms phasenstabilisiert sind (siehe Abbildung 6.3). Auf diese Weise kann die korrekte Funktion der Phasenstabilisierung der Laserdioden auf die Moden des Kamms mit Hilfe der Detektion verlorengegangener Zyklen überprüft werden, so daß die Laserdioden als Transferoszillatoren das Signal der Moden „verstärken“ und ein ausreichendes Signal-zu-Rausch-Verhältnis der gezählten Schwebungen garantieren. Abbildung 6.4 zeigt den von uns verwendeten experimentellen Aufbau des Teils der Frequenzkette, der unmittelbar den modengekoppelten Laser, seine Stabilisierung und die Schwebungssignale mit Laserdioden betrifft.

Für die vollständige phasenstabilisierte Frequenzkette gilt dann folgender, in Anhang C hergeleiteter Zusammenhang zwischen der Frequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs ($28f - 8\Delta f$) und den beiden gemessenen Radiofrequenzen f_{c1} und f_{c2} :

$$\begin{aligned} f_{1S-2S} &= -8f_{c1} - 64f_{c2} + (-8N_1 + 64N_2)f_r + f_{LO} \\ &= -8f_{c1} - 64f_{c2} + 2466.063\,84\text{ THz} . \end{aligned} \quad (6.4)$$

Dabei bedeuten $N_1 = 595\,351$ und $N_2 = 581\,421$ die Anzahl der Moden zwischen der Laserdiode bei 973 nm und den Moden, mit denen die Schwebungssignale gezählt werden, $f_r = 76$ MHz die stabilisierte Pulswiederholrate und $f_{LO} = 5.504$ GHz den Beitrag sämtlicher Lokaloszillator-Frequenzen der Phasenregelkreise.

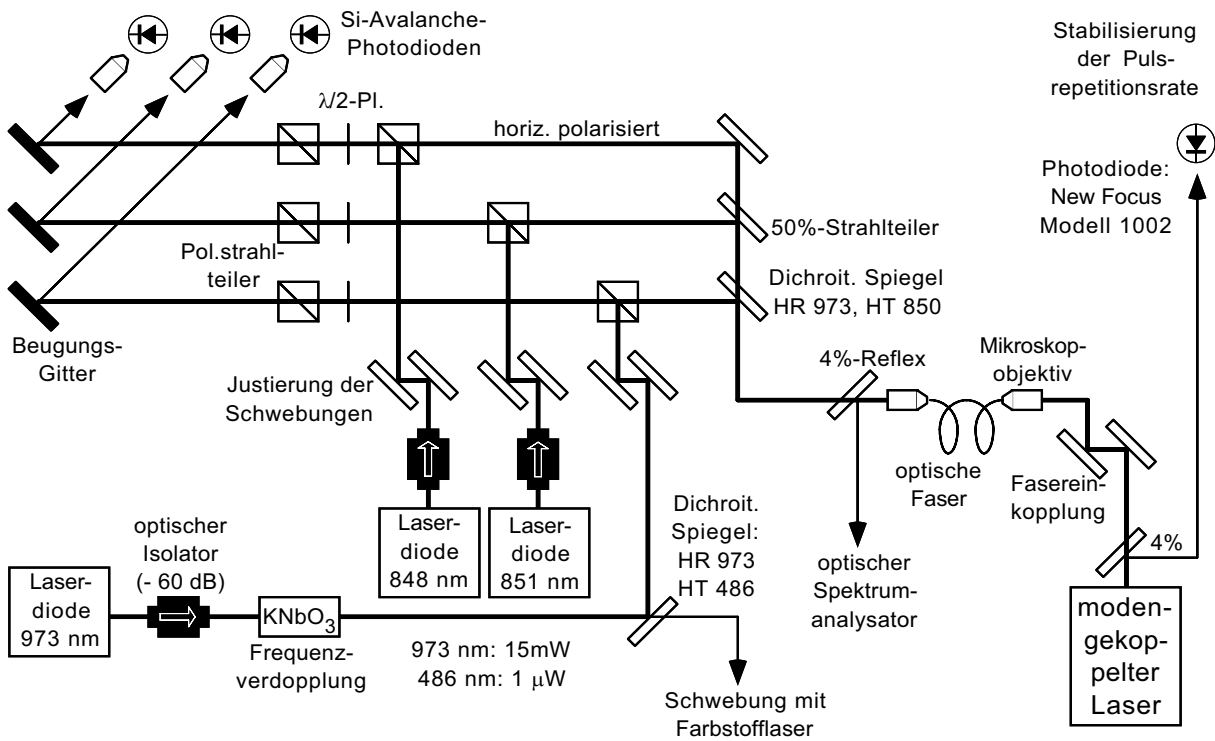


Fig. 6.4: Experimenteller Aufbau des den Femtosekundenlaser betreffenden Teils der Frequenzkette. Für die Stabilisierung der Pulsrepetitionsrate wird ein 4%-Reflex des Lichts des Femtosekundenlasers an einem Glasplättchen verwendet, ebenso wie für die Überwachung des durch die Faser verbreiterten Spektrums auf einem optischen Spektrumanalysator (Firma Ando, Modell AQ 6315A). Spiegelpaare ermöglichen die feine Justierung der Einkopplung in die Faser und der Überlagerung der Strahlen für die Schwebungen. Durch Verwendung dichroitischer Spiegel (HT=hochtransmittierend, HR=hochreflektierend) lassen sich die Spektralkomponenten des Pulszuges für die jeweiligen Schwebungen bei 973 nm bzw. 851/848 nm trennen, so daß die Lichtleistung des Lasers effizient ausgenutzt wird; ebenso wird die Leistung der Laserdiode bei 973 nm durch „Serienschaltung“ von Frequenzverdopplung und Schwebung effizient verwendet.

6.4 Das Wasserstoff-Spektrometer

Das Wasserstoff-Spektrometer ist in Abb. 6.5 dargestellt und ausführlich in [Zim90, Sch95, Gro98, Hub97] erläutert. Hier eine kurze Beschreibung: Der extrem schmale $1S$ - $2S$ Übergang (1.3 Hz natürliche Linienbreite) wird mit dem Licht eines frequenzverdoppelten, ultrastabilen Farbstofflasers bei 486 nm angeregt. Der Laser wird dabei mit Hilfe des schnellen Radiofrequenz-Seitenband-Verfahrens (Pound-Drever-Hall-Verfahren [Dre84]) auf einen Referenz-Resonator hoher Güte (Finesse $\approx 56\,000$) aus Zerodur stabilisiert, der in einem Vakuumtank temperaturstabilisiert und akustisch isoliert an Federn aufgehängt ist. Um die Fre-

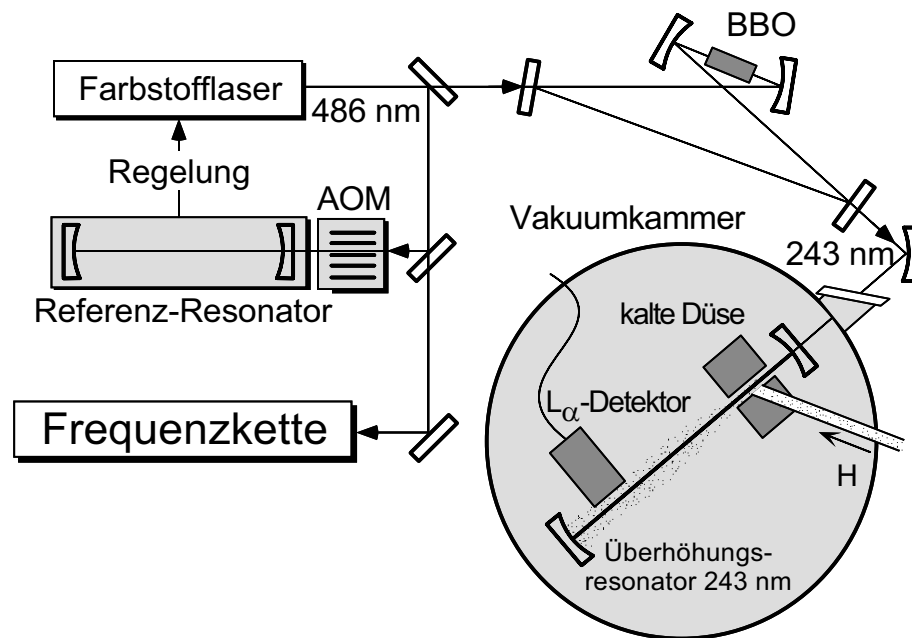


Fig. 6.5: Wasserstoff-Spektrometer zur Anregung der Doppler-freien $1S$ - $2S$ Zweiphotonen-Resonanz bei $\lambda = 243$ nm. Metastabile $2S$ Atome werden mit einem elektrischen „Quenching“-Feld am L - α -Detektor mit dem schnell zerfallenden $2P_{1/2}$ Zustand gemischt, wodurch sie ein Lyman- α -Photon emittieren, das von einem Photomultiplier detektiert wird.

quenz des Farbstofflasers definiert durchstimmen zu können, wird zur Stabilisierung ein Teil des Strahls in der Frequenz durch einen akusto-optischen Modulator (AOM) verschoben und zur Erzeugung des Fehlersignals der Stabilisierung verwendet. Die Verstimmung kann jetzt durch Ändern der Frequenz der akustischen Welle des AOMs vorgenommen werden. Das Spektrometer selbst besteht aus einer Vakuumkammer, in der eine mit flüssigem Helium gekühlte Düse einen kalten Atomstrahl (etwa 6 K) von Wasserstoff-Atomen erzeugt. Der atomare Wasserstoff war zuvor durch Dissoziation von H_2 -Molekülen in einer Mikrowellen-Gasentladung erzeugt worden. Das Licht des Spektroskopie-Lasers (ca. 500 mW) wird in einem Beta-Barium-Borat-Kristall (BBO) innerhalb eines Überhöhungsresonators verdoppelt, so daß danach etwa 25 mW zur Anregung der Zweiphotonen-Resonanz bei 243 nm zur Verfügung stehen. Dieses Licht wird in einem linearen Überhöhungsresonator (Finesse bis zu 150) innerhalb der Vakuumkammer kollinear dem Atomstrahl überlagert, so daß bis zu 300 mW Leistung pro Richtung zur Anregung der Atome bereitstehen.

Innerhalb der Flugzeit in diesem Resonator werden Wasserstoffatome mit einer Wahrscheinlichkeit von etwa 10^{-6} durch Absorption zweier Photonen in den metastabilen $2S_{1/2}$ -Zustand angeregt, wobei die Hyperfein-Komponente $F = 1 \rightarrow F' = 1$ benutzt wird, wie im Termsche-

ma Abb. 6.1 gezeigt. Durch ein zur Flugrichtung der Atome transversales kleines Magnetfeld (einige Gauss) wird die Zeeman-Entartung der m_F -Unterzustände aufgehoben, dadurch wird es möglich, allein die Magnetfeld-insensitive Hyperfein-Komponente $1S_{1/2}, F = 1, m_F = \pm 1 \rightarrow 2S_{1/2}, F' = 1, m_{F'} = \pm 1$ zu spektroskopieren. Die Wechselwirkungszone befindet sich innerhalb eines Graphit-beschichteten Drahtgeflechtes, das als Faraday-Käfig zur Abschirmung elektrischer Streufelder dient. Nach einer Flugstrecke von etwa 14 cm ab der Düse wird die Zahl der angeregten Atome am Lyman- α -Detektor bestimmt: Durch den Einfluß eines elektrischen „Quenching“-Felds wird der metastabile $2S_{1/2}$ Zustand mit dem rasch zerfallenden $2P_{1/2}$ Zustand gemischt und die emittierte Lyman- α -Strahlung mit einem Photomultiplier detektiert.

Der $1S$ - $2S$ Übergang ist in erster Ordnung der Geschwindigkeit Doppler-frei, da von allen Geschwindigkeitsklassen des Strahls je ein Photon jeder Richtung des Lichts im linearen Resonator aufgenommen werden kann, so daß die Rot-Verschiebung der einen Richtung in der Summe die Blau-Verschiebung der anderen Richtung (in erster Ordnung) ausgleicht [Vas70, Let77]. In höherer Ordnung jedoch kommt die relativistische Zeitdilatation ins Spiel, die die beobachtete Spektrallinie asymmetrisch verbreitert und ihr Maximum zu niederen Frequenzen hin verschiebt. Zur Verminderung dieses systematischen Effekts und der Flugzeit-Verbreiterung der Linie wird ein kalter Atomstrahl verwendet (ca. 6 K). Außerdem wird ein Verfahren zur Selektion kalter Atome benutzt: Das Anregungs-Licht wird mit einem mechanischen Zerkacker periodisch ausgeschaltet und Signal-Photonen erst nach einer gewissen Verzögerungszeit τ (hier 1.2 ms) detektiert. So wird sichergestellt, daß nur Atome mit einer Geschwindigkeit $v \leq v_{\max} = l/\tau$ (mit $l = 14$ cm maximale Flugstrecke) zum Signal beitragen. Bei früheren Experimenten konnten bei einer Verzögerungszeit von $\tau = 1.6$ ms bis zu 1 kHz schmale Linien (bei $\lambda = 243$ nm) beobachtet werden [Hub99], d. h. mit einer Güte von 10^{12} . Die Form der so erhaltenen Linien ist gut verstanden und kann mit einem von A. Huber entwickelten Linienform-Modell [Hub99, Hub97] theoretisch beschrieben werden.

6.5 Systematische Effekte der Spektroskopie

Die im folgenden gegebenen Daten beziehen sich nur auf das Experiment, welches mit der kommerziellen Cs-Atomuhr (Hewlett-Packard, HP 5071A) durchgeführt wurde. Die dabei erzielte Genauigkeit der Frequenzmessung war durch die Stabilität der Cs-Uhr limitiert. Das nachfolgende Experiment, das eine Cs-Fontänenuhr mit höherer Stabilität, ansonsten jedoch einen identischen experimentellen Aufbau verwendete, konnte dadurch die Genauigkeit der Frequenzmessung um etwa eine Größenordnung steigern. Auf dieses Experiment, dessen Auswertung Gegenstand der Dissertation von Markus Niering [Nie00b, Nie00a] ist, soll nur an Stellen eingegangen werden, an denen ein Vergleich der beiden verwendeten Frequenzstandards für die

Technik der Frequenzmessung relevante Zusatzinformationen liefert.

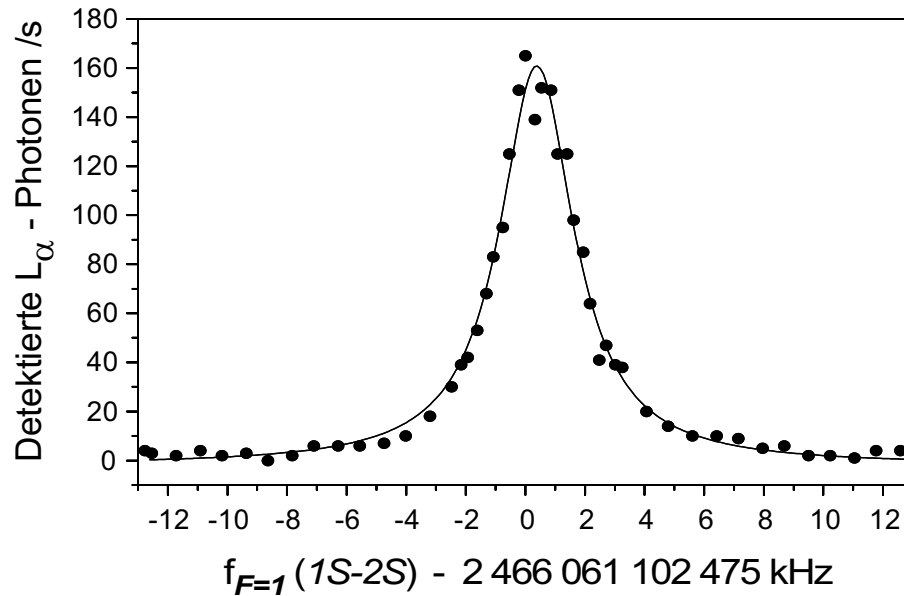


Fig. 6.6: Gemessene $1S(F = 1) \rightarrow 2S(F' = 1)$ Resonanz in Wasserstoff als Funktion der mit der Frequenzkette bestimmten Absolutfrequenz. Die Unsicherheit der Frequenzachse beträgt etwa 400 Hz.

In dem Experiment mit der kommerziellen Cs-Uhr bestimmen wir die Linienmitten durch Anpassung einer Lorentz-Funktion an die Daten. Ein typisches Beispiel einer aufgenommenen $1S-2S$ Spektrallinie ist in Abbildung 6.6 gezeigt. Simulationen [Hub99] bestätigen, daß diese Näherung der Linienform bei der gewählten Verzögerungszeit $\tau = 1.2$ ms ausreichend genau ist, wenn die Doppler-Verschiebung zweiter Ordnung entsprechend korrigiert wird. Eine obere Schranke ist dabei durch $\Delta\nu = -1/2(v/c)^2 f_{1S-2S}$ gegeben, mit der oben definierten Maximalgeschwindigkeit v_{\max} . Das detailliertere Linienform-Modell sagt jedoch voraus, daß bei langen Verzögerungen τ eine effektive Geschwindigkeit $\bar{v} \approx (1/2) v_{\max}$ eine realistische Abschätzung des Effekts liefert, da die langsamsten Atome überproportional lange mit dem Licht wechselwirken können. Wenn man eine Unsicherheit von 50% in \bar{v} annimmt, so ergibt sich daraus eine relative Korrektur der Rot-Verschiebung von $1.9 \times 10^{-14} \pm 1.9 \times 10^{-14}$.

Einer Abschätzung der Blau-Verschiebung der Linie durch den AC-Stark-Effekt (bei 121 nm) liegt nach [Bea86] der lineare Zusammenhang $\Delta\nu_{\text{AC-Stark}} = 2I\beta_{\text{AC-Stark}}$ mit $\beta_{\text{AC-Stark}} = 1.667 \times 10^{-4} \text{ Hz (W/m}^2\text{)}^{-1}$ zugrunde. Die Intensität I bezieht sich dabei auf eine Richtung der stehenden Welle im Resonator. Mit Hilfe des Linienform-Modells [Hub97] kann nun über Mittelung der Teilchen-Trajektorien die tatsächliche AC-Stark-Verschiebung für die speziellen

Parameter des Experimentes berechnet werden: $2.45(5)$ Hz/mW. Daraus ergibt sich bei einer Leistung von $270 \text{ mW} \pm 50\%$ pro Richtung eine Verschiebung von $+2.7 \times 10^{-13} \pm 1.3 \times 10^{-13}$. Die Unsicherheit von 50% hat ihren Ursprung in der nur ungenau möglichen Bestimmung der absoluten Laser-Intensität *innerhalb* des Resonators aus Einkoppel-Effizienz und Überhöhung im Resonator.

Andere auftretende systematische Effekte sind wesentlich kleiner: Verschiebungen durch elektrische Streufelder (DC-Stark-Effekt) können durch $\Delta\nu_{\text{DC-Stark}} = +3600 E^2 \text{ Hz (V/cm)}^{-2}$ [Bet77] abgeschätzt werden, wobei in einem sehr ähnlichen Aufbau in Paris Streufelder $\leq 30 \text{ mV/cm}$ gemessen wurden [Gar90], die bei uns zu einer Verschiebung von $+1.2 \times 10^{-15}$ führen würden. Druck-Verschiebungen durch den Hintergrund-Gasdruck von 10^{-6} mbar in der Vakuumkammer ergeben sich aus der in [Kil98] veröffentlichten Beziehung $\Delta\nu_{\text{press}} = -3.8 \pm 0.8 \times 10^{-10} n \text{ Hz cm}^3$, wobei n die Wasserstoff-Gasdichte bedeutet. Die dadurch verursachte Verschiebung würde etwa -4×10^{-15} ausmachen. Beiträge durch residuelle Doppler-Verschiebung erster Ordnung und Unschärfe Δk des Wellenvektors der Photonen in einem Gauss'schen Strahl endlicher Ausdehnung (vergleiche [Hub97, Hub99]) können ebenfalls $< 4 \times 10^{-15}$ abgeschätzt werden. Alle diese Effekte können durch einen Beitrag von 8×10^{-15} zur Gesamtunsicherheit berücksichtigt werden.

6.6 Auswertung der Daten

Bei der Auswertung der Daten ist man mit dem Problem der Stabilität der Radiofrequenzquelle konfrontiert. Die Erfahrung hat gezeigt, daß die günstigste Meßzeit für die Frequenzmessung eines Datenpunkts etwa 1 s beträgt. Die von uns benutzte kommerzielle Cs-Atomuhr hat eine spezifizierete Stabilität (Allan-Standard-Abweichung²) von 5.0×10^{-12} in 1 s Meßzeit. Mit dieser Genauigkeit könnte man die Form der $1S$ - $2S$ Linie mit einer relativen Breite von etwa 10^{-12} bei einmaligem Durchstimmen des Lasers über die Resonanz nicht auflösen. Die Cs-Uhr zeigt jedoch für Zeiten ab etwas mehr als 1 s das typische Stabilitätsverhalten eines durch Schrotrauschen der Detektion begrenzten atomaren Frequenzstandards (siehe Abbildung 6.7): Die Stabilität nimmt mit der Quadratwurzel der Mittelungszeit zu ($\sigma_y(\tau) \propto \tau^{-1/2}$), bis die durch Flicker-Rauschen gegebene Limitierung der Stabilität erreicht ist [Rut78, Bar71, All66]. Die Natur des weißen Rauschens impliziert dabei, daß die Meßwerte einer festen Frequenz normalverteilt streuen und statistisch gemittelt werden können, wobei bei N Meßpunkten die Unsicherheit des Mittelwerts mit $1/\sqrt{N}$ sinkt. Um diese Eigenschaft in unserem Experiment

²Die Allan-Standardabweichung ist definiert als $\sigma_y(\tau) = \left(1/\sqrt{2(N-1)}\right) \times \sqrt{\sum_{k=1}^{N-1} (\bar{\nu}_k/\nu_0 - \bar{\nu}_{k-1}/\nu_0)^2}$, wobei $\bar{\nu}_k$ die mittlere Frequenz $(\varphi(t_k) - \varphi(t_k + \tau))/2\pi\tau$ im k -ten Zeitintervall bei Aufteilung der gesamten Meßzeit in N gleich lange Intervalle der Dauer τ ist und ν_0 die Nominalfrequenz bedeutet.

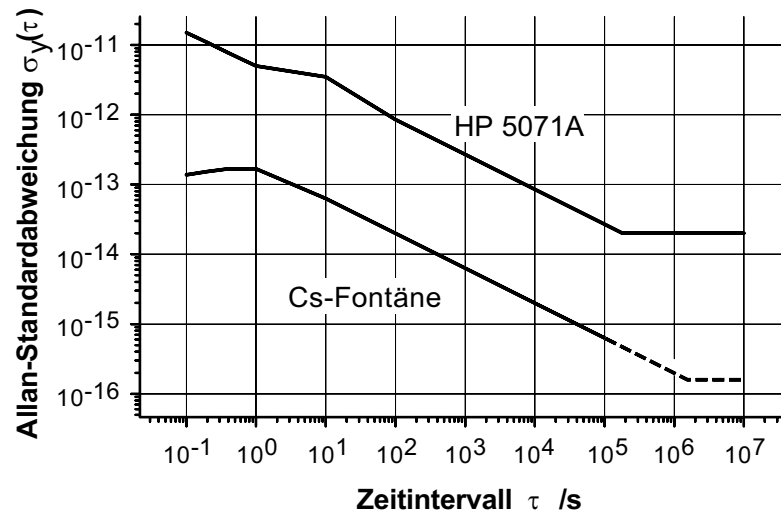


Fig. 6.7: Skizzierte Allan-Standard-Abweichungen für kommerzielle Cäsium-Atomuhr Hewlett-Packard HP 5071A (bis $\tau = 5 \times 10^5$ s laut Spezifikationen) und Cs-Fontänenuhr, ähnlich der im Experiment verwendeten. Die Graphen stellen keine Meßwerte dar, sondern sollen nur das grobe Verhalten skizzieren. Deutlich sichtbar ist das für weißes Rauschen typische Verhalten $\sigma_y(\tau) \propto \tau^{-1/2}$ ab $\tau = 10$ s bis zum Erreichen des Flicker-Rauschhintergrundes.

optimal ausnutzen zu können und gleichzeitig sofort die Linienform auflösen zu können, bedienen wir uns einer Referenz mit besserer Kurzzeit-Stabilität: dem Referenz-Resonator, auf den der Farbstofflaser stabilisiert ist. Im Bereich von größenordnungsmäßig 100 s bis 1000 s ist dessen Stabilität wesentlich besser als die der Cs-Uhr, so daß die Linienform aufgelöst wird. Für längere Zeiten dominieren jedoch Effekte unregelmäßiger Frequenzdriften das Verhalten.

Für die Datenanalyse bestimmen wir daher zuerst die Frequenz des Lichts im Resonator mit einer Totzeit der Zähler von 1 s. Um den mit einer Geschwindigkeit von bis zu 6×10^{-14} pro Sekunde driftenden Resonator als „optisches Schwungrad“ zu benutzen, passen wir an die gemessenen Daten ein Polynom dritten Grades an, das das langzeitliche Verhalten des Resonators für einen Meßzeitraum von mehr als drei Stunden gut beschreibt (Abbildung 6.8). Dieses Polynom wird dann verwendet, um aus der Anzahl der emittierten Lyman- α -Photonen und den verwendeten AOM-Frequenzen durch Zuordnung mit Hilfe der aufgezeichneten Zeitmarken die Absolutfrequenzen der $1S$ - $2S$ Linienmitten zu bestimmen.

Der Vergleich der hier aufgenommenen Daten mit den Daten aus dem Nachfolge-Experiment mit der Cs-Fontänenuhr (Abbildung 6.8) zeigt deutlich den Einfluß der Stabilität der Radiofrequenz-Referenz: Die etwa 30-fach bessere Stabilität der Fontänenuhr hat ebenfalls eine um einen Faktor 30 bessere Auflösung der Absolutfrequenzen zur Folge. Das bedeutet: Der Beitrag der Frequenzkette zum Rauschen ist gegenüber der kommerziellen Cs-Uhr ver-

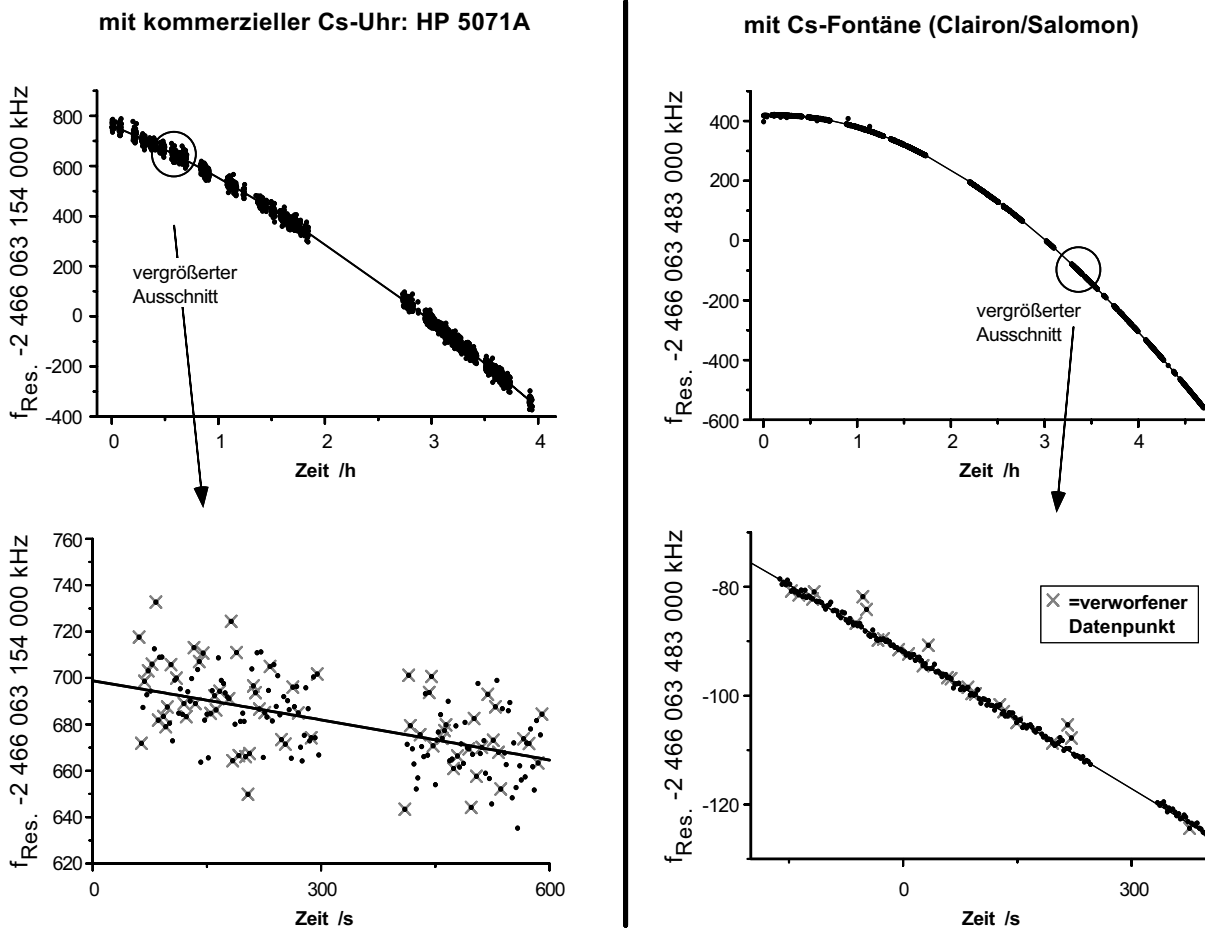


Fig. 6.8: Messung der Absolutfrequenz des Lichts im Referenz-Resonator und den Daten angepaßtes Polynom dritter Ordnung. Links: mit kommerzieller Cs-Uhr. Rechts: mit Cs-Fontäne mit ca. 30 fach besserer Stabilität (bei 1 s Meßzeit). Oben: Daten des gesamten Meßtages (nur gültige Datenpunkte). Unten: vergrößerter Ausschnitt von wenigen Minuten. Etwa 25% aller Datenpunkte werden durch die Methode zur Überprüfung der korrekten Funktion aller Phasenstabilisierungen verworfen.

nachlässigbar. Die Auswertung der Daten ergibt für die Streuung der (gültigen) Datenpunkte der Frequenzmessung $\sigma_{\text{HP}} = 6.1 \times 10^{-12}$ (kommerzielle Cs-Uhr) und $\sigma_{\text{Font}} = 2.1 \times 10^{-13}$ (Fontänenuhr) bei 1 s Meßzeit. Dagegen die Stabilitäten der Uhren selbst: 5×10^{-12} in 1 s (kommerzielle Uhr, Spezifikation) und $2 \times 10^{-13} \tau^{-1/2}$ (gemessene Allan-Standardabweichung der Fontäne). Die gute Übereinstimmung der Stabilitäten vor und nach Multiplikation der Frequenzen in den optischen Bereich läßt auch auf dem Niveau der Cs-Fontänenuhr noch keinen nennenswerten Beitrag der Frequenzkette zum Rauschen der Datenpunkte erkennen; die Kette scheint weniger als 10^{-13} in 1 s zum Rauschen beizutragen!

Innerhalb eines typischen Meßtages wurden durchschnittlich 35 Wasserstoff-Spektren aufgenommen bei durchschnittlich 900 s gültiger Meßdaten der Resonator-Frequenz. Die bestimmten Frequenzen der Linienmitten streuen dabei hauptsächlich aufgrund von zwei Effekten:

- Statistische Unsicherheit in der Bestimmung der Linienmitte durch Anpassung einer Lorentz-Funktion aufgrund des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses der Daten.
- Abweichung der tatsächlichen Drift des Resonators von der Beschreibung durch ein Polynom dritten Grades über mehrere Stunden hinweg. Die gemessenen Mittenfrequenzen zeigen dabei Rauschen in Form von zeitlichen Oszillationen mit einer Amplitude von wenigen 10^{-13} und einer Periode im Bereich von einigen 10 min bis zu etwa einer Stunde.

Da das an die Daten angepaßte Polynom jedoch das Langzeitverhalten des Resonators gut beschreibt, ist eine statistische Behandlung der Daten bei Mittelung über den gesamten Meß-Zeitraum an einem Tag gerechtfertigt. Vergleichende Auswertungen, bei der der Meß-Zeitraum aufgeteilt und Polynome abschnittsweise angepaßt wurden, bestätigen dies.

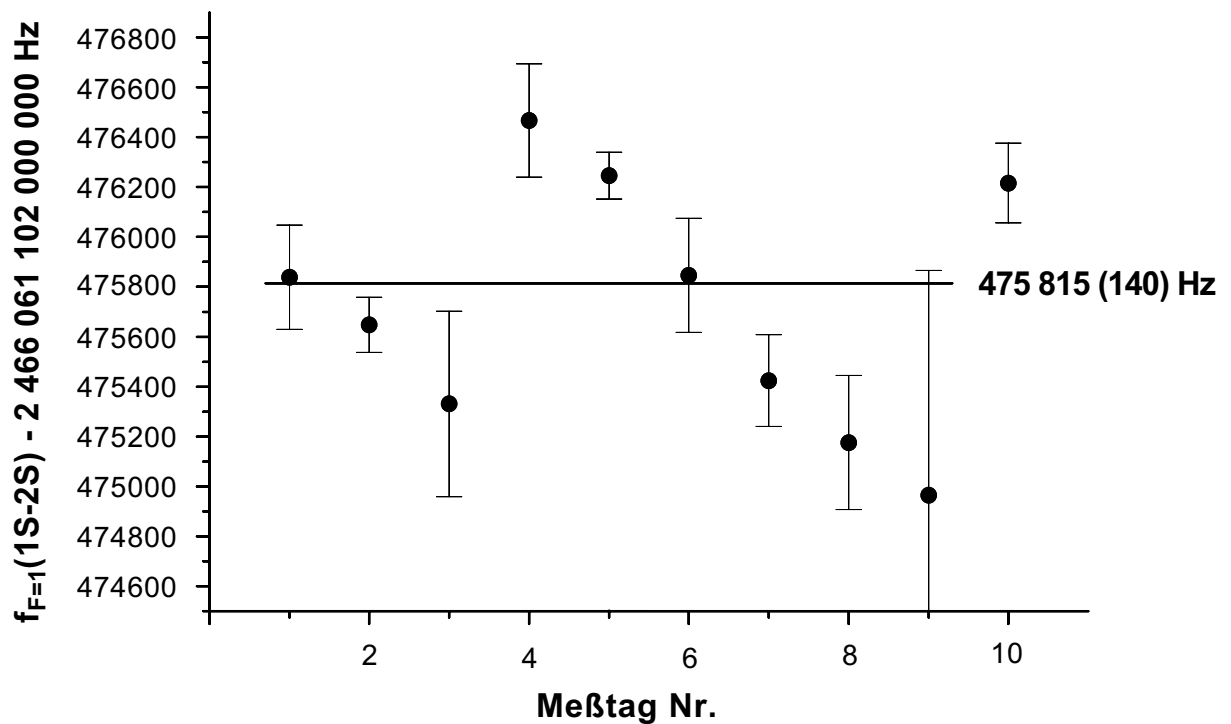


Fig. 6.9: Gesamtdaten der Messung des $1S_{1/2} (F = 1) \rightarrow 2S_{1/2} (F' = 1)$ -Intervalls in Wasserstoff. Gezeigt sind die Mittelwerte und Unsicherheiten der 10 Meßtage, in denen Unsicherheiten der Frequenz der Cs-Uhr noch nicht enthalten sind. Diese können aus der Streuung der Werte abgeschätzt werden. Systematiken des Wasserstoff-Spektrometers sind noch nicht korrigiert.

Die Mittelwerte der 10 Meßtage und ihre statistischen Unsicherheiten sind in Abbildung 6.9

gezeigt. Die unterschiedlich großen Fehlerbalken hängen im wesentlichen mit der Anzahl der registrierten Spektren zusammen. Diese Unsicherheiten der einzelnen Meßtage beinhalten dabei jedoch noch nicht die Unsicherheit in der Frequenz der Cs-Uhr: Diese zeigt sich nur in der Unsicherheit in der Bestimmung der Parameter bei Anpassung des Polynoms, jedoch nicht in der Streuung der mit diesem Polynom bestimmten Linienmitten. Wie eine Abschätzung des Einflusses des Flicker-Rauschens mit [Bar71] zeigt, wird das Verhalten der Cs-Uhr in unserem Fall (nur 9000 s reine Meßzeit) für das gesamte Experiment von weißem Rauschen dominiert: Das gewichtete statistische Mittel der 10 Werte mit seiner Standardabweichung ist ein guter Schätzwert für die Frequenz des 1S-2S Übergangs.

Aus den Daten der 10 Meßtage kann der Beitrag zur Unsicherheit durch die Instabilität der Uhr in den 900 s Meßzeit eines typischen Meßtages abgeschätzt werden zu 1.5×10^{-13} , was etwa 375 Hz bei der 1S-2S Frequenz entspricht (Spezifikation: $< 2.8 \times 10^{-13}$). Für diese Abschätzung wurde von einer Unsicherheit am n-ten Tag von $\sigma_{\text{ges}}^2(n) = \sigma_{\text{Fits}}^2(n) + \sigma_{\text{Uhr}}^2$ mit unbekanntem Beitrag der Cs-Uhr ausgegangen. Berechnet man das gewichtete Mittel der 10 Datenpunkte, $x(n)$,

$$\bar{x} = \sum_{n=1}^N \frac{1}{\sigma_{\text{ges}}^2(n)} x(n) \bigg/ \sum_{n=1}^N \frac{1}{\sigma_{\text{ges}}^2(n)} ,$$

so müssen bei statistischer Verteilung der Daten der innere Fehler σ_{int} , mit

$$\frac{1}{\sigma_{\text{int}}^2} = \sum_{n=1}^N \frac{1}{\sigma_{\text{ges}}^2(n)} ,$$

und der äußere Fehler σ_{ext} von \bar{x} , mit

$$\sigma_{\text{ext}}^2 = \sum_{n=1}^N \frac{1}{\sigma_{\text{ges}}^2(n)} (x(n) - \bar{x})^2 \bigg/ (N - 1) \sum_{n=1}^N \frac{1}{\sigma_{\text{ges}}^2(n)}$$

übereinstimmen [Grä94]. Aus dieser Forderung wurde σ_{Uhr}^2 und damit Mittelwert und Unsicherheit der Meßdaten bestimmt zu 2 466 061 102 475 815(140) Hz. Die gesamte statistische Unsicherheit der Messung beträgt damit 5.7×10^{-14} . Um die Frequenz des $1S_{1/2}(F = 1) \rightarrow 2S_{1/2}(F' = 1)$ -Intervalls in Wasserstoff zu erhalten, müssen noch die schon beschriebenen Systematiken des Wasserstoff-Spektrometers korrigiert, sowie ein kleiner Beitrag von 5.4×10^{-14} subtrahiert werden, der von der Kalibration der Cs-Uhr mit Hilfe des GPS-Zeitsignals stammt und die Gravitations-Rotverschiebung des GPS-Signals in 490 m (± 10 m) Höhe unseres Labors berücksichtigt (siehe Anhang D). Sämtliche Korrekturen und Meß-Unsicherheiten sind in Tabelle 6.1 zusammengefaßt.

Um die Zentroid-Frequenz des 1S-2S Übergangs zu bestimmen, müssen noch die Beiträge der gut bekannten Hyperfein-Aufspaltungen der 1S und 2S Niveaus berücksichtigt werden, indem $310\,712\,223(13)$ Hz = $1/4(\Delta\text{HFS}_{1S} - \Delta\text{HFS}_{2S})$ zum Ergebnis addiert werden [Ess71, Heb56].

Beitrag von	Frequenz in Hz	Frequenz (rel. Einh.)	Unsicherheit (rel. Einh.)
$f_{1S-2S} - 2.466\,061\text{ THz}$ ($F = F' = 1$, unkorrigiert)	102 475 815		5.7×10^{-14}
AC-Stark-Effekt	-660	-2.7×10^{-13}	1.3×10^{-13}
2. Ordnung Doppler-Effekt	+45	$+1.9 \times 10^{-14}$	1.9×10^{-14}
andere (Druck-Versch. etc.)	—	—	$< 8 \times 10^{-15}$
GPS-Korrektur	—	—	$< 2 \times 10^{-14}$
GPS Grav.-Rotversch.	-130	-5.4×10^{-14}	1×10^{-15}
$= f_{1S-2S} - 2.466\,061\text{ THz}$ ($F = F' = 1$)	$= 102\,475\,070$		1.5×10^{-13}
Hyperfein-Korrektur	+310 712 223		5×10^{-15}
$= f_{1S-2S} - 2.466\,061\text{ THz}$ (Zentroid)	413 187.29(37) kHz		1.5×10^{-13}

Tabelle 6.1: Bestimmung der 1S-2S Zentroid-Frequenz. Unsicherheiten und Korrekturen der Systematiken zur gemessenen Frequenz (Abb. 6.9) des $1S_{1/2}(F = 1) \rightarrow 2S_{1/2}(F' = 1)$ -Übergangs. Die Korrektur aufgrund der Kalibrierung der Cs-Uhr mit dem GPS-Signal ist schon in den Tages-Meßdaten (Abb. 6.9) enthalten, hier muß noch ihre Unsicherheit berücksichtigt werden.

Das Ergebnis für die 1S-2S Zentroid-Frequenz lautet damit

$$f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187.29(37)\text{ kHz} . \quad (6.5)$$

Die Unsicherheit dieses Werts stammt hauptsächlich von der Unsicherheit der AC-Stark-Verschiebung (1.3×10^{-13}) und der statistischen Unsicherheit von 5.7×10^{-14} . Beide Beiträge konnten in dem nachfolgenden Experiment mit der Cs-Fontänenuhr aufgrund der etwa 30-fach besseren Stabilität wesentlich verringert werden. So war es damit möglich, Messungen der Übergangs-Frequenz bei verschiedenen Laserleistungen mit ausreichender Frequenz-Auflösung in vernünftiger Integrationszeit durchzuführen. Durch Extrapolation der Messungen zu verschwindender Leistung konnte damit der Unsicherheits-Beitrag der AC-Stark-Verschiebung weitgehend eliminiert werden [Nie00b, Nie00a]. Dadurch konnte eine durch die spektroskopische Auflösung begrenzte Messung der 1S-2S Übergangs-Frequenz durchgeführt werden und eine Genauigkeit von 1.8×10^{-14} erreicht werden. Die aus diesem Experiment bestimmte Übergangsfrequenz lautet:

$$f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187\,103(46)\text{ Hz} . \quad (6.6)$$

Zusammenfassend ist mit diesen Experimenten der erste direkte phasenkohärente Vergleich von Radiofrequenzen und Vakuum-Ultraviolett-Frequenzen durch Messung des $1S$ - $2S$ Übergangs gelungen. Die hier vorgestellte Messung ist nur durch die Kurzzeit-Stabilität der Cs-Uhr begrenzt. Die zweite darauffolgende Messung mit einer transportierbaren Cs-Fontänenuhr ist durch die Systematiken der Wasserstoff-Spektroskopie auf 1.8×10^{-14} begrenzt. Die bisherigen Messungen konnten dadurch um mehr als eine Größenordnung in der Genauigkeit verbessert werden.

Kapitel 7

Bestimmung der Frequenz des $\text{In}^+ 5s^2\ ^1S_0$ - $5s5p\ ^3P_0$ Übergangs

Ein einzelnes Laser-gekühltes Ion in einer Radiofrequenz-Falle stellt eine gute Näherung für einen punktförmigen bewegungslosen Absorber in einer störungsfreien Umgebung dar. Es eignet sich daher in fast idealer Weise als Kandidat für eine optische Atomuhr hoher Genauigkeit. Von der Arbeitsgruppe Prof. H. Walther wird ein einzelnes Indium-Ion in einer Miniatur-Falle vom Paul-Straubel-Typ [Yu91, Sch93] als Frequenzstandard untersucht [Bec00, Pei99]. In Zusammenarbeit mit E. Peik, Th. Becker, J. von Zanthier und M. Fries aus der Gruppe von Prof. H. Walther, Garching, sowie A. Nevsky und M. Skvortsov aus der Gruppe von Prof. S. N. Bagayev, Novosibirsk haben wir die Absolutfrequenz des $^{115}\text{In}^+ 5s^2\ ^1S_0 - 5s5p\ ^3P_0$ Übergangs gemessen. Zur Zeit dieser Experimente war die Technik der Frequenzmessung mit modengekoppelten Lasern noch nicht vollständig entwickelt; für diese Messung wurde eine Frequenzkette verwendet, die den Indium-Übergang mit einem Methan-stabilisierten He-Ne-Laser bei $3.39\ \mu\text{m}$ und einem Nd:YAG-Laser bei $1064\ \text{nm}$ verbindet, dessen zweite Harmonische auf eine Hyperfein-Linie in molekularem Iod stabilisiert ist. Eine Frequenzlücke von $1.43\ \text{THz}$ bei $850\ \text{nm}$ wurde dabei mit einem optischen Frequenzkamm-Generator (OFCG, Abschnitt 4.8) überbrückt. Die Frequenz des Indium-Übergangs wurde zu $1\,267\,402\,452\,914(41)\ \text{kHz}$ bestimmt. Ihre Genauigkeit ist durch die Unsicherheit der Iod-Referenz begrenzt. Die Ergebnisse dieses Experiments, das vorherige Messungen des Übergangs um mehr als drei Größenordnungen verbessert, wurden in [Zan99] veröffentlicht.

Eine weitere Frequenzmessung mit höherer Genauigkeit, bei der (wie bei der Messung der Cs D_1 Linie) der Indium-Übergang mit dem Methan-stabilisierten He-Ne-Laser verglichen wird und ein optisches Frequenzintervall von $36.6\ \text{THz}$ mit dem Frequenzkamm des modengekoppelten Lasers überbrückt wird, ist noch in der Phase der Datenauswertung. Die Genauigkeit dieser Messung wird bei etwa 3×10^{-13} erwartet, limitiert durch die Unsicherheit des Methan-

Standards, was eine Steigerung der Genauigkeit um weitere zwei Größenordnungen bedeutet (zur Veröffentlichung in Optics Letters vorgesehen). In einer geplanten dritten Stufe der Frequenzmessungen soll in ähnlicher Weise wie bei der Messung des $1S-2S$ Übergangs in Wasserstoff (Kapitel 6) eine Frequenzkette verwendet werden, die die Frequenz des In^+ Übergangs direkt mit der Radiofrequenz einer Cäsium-Fontänenuhr [San99] vergleicht. Mit diesem Experiment werden dann wahrscheinlich Messungen möglich, die die volle momentan mögliche Auflösung der Indium-Spektroskopie ausnutzen und damit in einen Genauigkeitsbereich von 10^{-15} vordringen können.

7.1 Spektroskopie des In^+ -Ions

Mit einer Linienbreite von 0.8 Hz bei einer Frequenz von 10^{15} Hz hat der $^{115}\text{In}^+ 5s^2\ ^1S_0 - 5s5p\ ^3P_0$ Übergang ein Genauigkeits-Potential von etwa 10^{-18} , das zukünftig mit Lasern von Sub-Hertz-Linienbreite nach einigen Tagen Mittelungszeit erreicht werden könnte. Dieser „Uhrenübergang“ ist ein durch $J = 0 \rightarrow J = 0$ in allen Multipolordnungen verbotener, aber durch kleine Beimischungen der 3P_1 und 1P_1 Niveaus zum 3P_0 Niveau aufgrund der Hyperfeinwechselwirkung ermöglichter Dipolübergang. Aufgrund des verschwindenden elektronischen Gesamtdrehimpulses koppeln die beteiligten Zustände nur sehr schwach an elektrische oder magnetische Störfelder. Die Magnetfeldabhängigkeit der angeregten $|F = 9/2; m_F = 9/2\rangle \rightarrow |F' = 9/2; m_{F'} = 7/2\rangle$ Hyperfein-Komponente ist durch -626 ± 16 Hz/G gegeben [Bec00], wobei zur Zeit das Magnetfeld mit einer Unsicherheit von wenigen mG zum Verschwinden gebracht werden kann (Felder im μG -Bereich werden in Zukunft angestrebt). Andere systematische Unsicherheiten (quadratischer Stark-Effekt, zweiter Ordnung Doppler-Effekt etc.) tragen bei der Temperatur des Ions von $T \approx 150\ \mu\text{K}$ einige Größenordnungen weniger zur Unsicherheit bei. Die systematischen Unsicherheiten werden daher erst bei einer Genauigkeit der Frequenzmessung von $< 10^{-14}$ relevant werden, im Moment sind sie vernachlässigbar.

Das einzelne Indium-Ion in der Falle wird durch Seitenbandkühlung auf der 360 kHz breiten $5s^2\ ^1S_0 \rightarrow 5s5p\ ^3P_1$ Interkombinationslinie lasergekühlt (Abbildung 7.1). Anregungen des Uhrenübergangs durch die vierte Harmonische eines Nd:YAG-Lasers bei $\lambda = 946\ \text{nm}$, des „Uhrenlasers“, werden durch ein optisch doppelresonantes Elektron-„shelving“-Schema [Deh82] detektiert: Nach 15 ms Anregungszeit durch den Uhrenlaser wird die Population des metastabilen 3P_0 Niveaus über die Fluoreszenz des $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$ Kühlübergangs abgefragt. Fehlende Fluoreszenz signalisiert eine Anregung. Auf diese Weise können Anregungen fast hundertprozentig sicher detektiert werden. Die relative Anregungshäufigkeit, als Funktion der Frequenz des Uhrenlasers, stellt dann eine statistische Schätzung der Anregungswahrscheinlichkeit dar. Ein typisches Spektrum des Uhrenübergangs mit insgesamt 198 Anregungen ist in

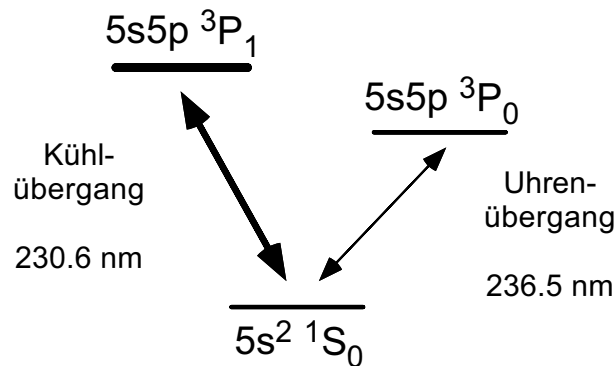


Fig. 7.1: Niedrigste Energieniveaus des In^+ -Ions. Das Ion wird durch Seitenbandkühlung auf der $5s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 5s5p \ ^3P_1$ Interkombinationslinie lasergekühlt (360 kHz natürliche Linienbreite). Anregungen auf dem „Uhrenübergang“ $5s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 5s5p \ ^3P_0$ mit weniger als 1 Hz Linienbreite werden durch fehlende Fluoreszenz des Kühlübergangs detektiert.

Abbildung 7.2 gezeigt. Die Linienbreite des Spektrums von 200 Hz ist durch niederfrequente akustische (< 1 kHz) Instabilitäten des Spektroskopie-Lasers begrenzt, der mit dem Pound-Drever-Hall-Verfahren [Dre84] auf einen ULE-Referenz-Resonator (engl. ultra low expansion) hoher Güte stabilisiert ist. Analog wie bei der Wasserstoff-Spektroskopie kann die Frequenz dieses Lasers durch einen akusto-optischen Modulator im Strahlengang des zur Stabilisierung abgezwigten Teilstrahls definiert durchgestimmt werden.

7.2 Frequenzmessung

Zur Messung der Frequenz des Indium-Uhrenübergangs wurde die in Abbildung 7.3 gezeigte Frequenzkette verwendet, die zwei Frequenzstandards mit dem Indium-Übergang (rechts unten) verbindet, einen Methan-stabilisierten He-Ne-Laser [Bag97a] (links unten) und einen frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser, der auf die a_{10} -Hyperfeinkomponente des R(56)32-0 Übergangs in molekularem Iod stabilisiert war (rechts oben). Die Frequenz des He-Ne-Lasers war zuvor durch mehrmalige Kalibration an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) Braunschweig mit $f_{\text{He-Ne}} = 88\,376\,182\,599\,937(23)$ Hz gemessen worden (siehe auch Kapitel 5). Die Absolutfrequenz der a_{10} -Hyperfeinkomponente des R(56)32-0 Iod-Übergangs ist mit einer Unsicherheit von 40 kHz bekannt: $f_{a_{10}} = 563\,260\,223.471(40)$ MHz [Jun95a, Jun95b, Eic95]. Diese Unsicherheit ist der wichtigste Beitrag zur Gesamt-Unsicherheit der hier beschriebenen Messung des Indium-Uhrenübergangs.

Der niederfrequenter Teil (linke Seite) dieser Kette war in unserem Labor aufgebaut, während

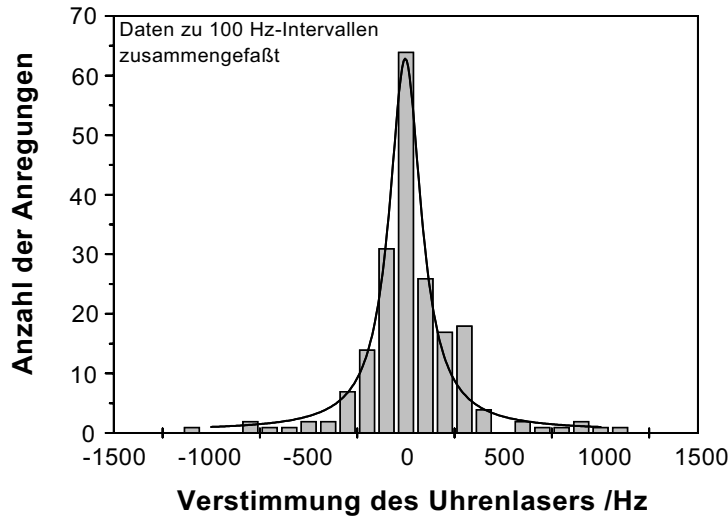


Fig. 7.2: Typisches Spektrum des Indium-Uhrenübergangs als Histogramm mit angepaßter Lorentz-Funktion (volle Halbwertsbreite: 200 Hz). Insgesamt 198 Anregungen des 3P_0 Niveaus wurden während der Messung registriert. Die Anzahl der erfolgreichen Anregungen bei konstanter Anzahl der Anregungsversuche pro Frequenzintervall ist gegen die Frequenzverstimmung des Spektroskopie-Lasers von der zur Stabilisierung verwendeten Mode des Referenzresonators aufgetragen (Linienmitte als willkürlicher Nullpunkt der Skala).

sich der hochfrequente Teil (rechte Seite) im Labor des Indium-Experiments direkt über unserem Labor befand. Die Verbindung der Teilerperimente wurde durch eine Glasfaser ermöglicht, die das Licht der Laserdiode bei 852 nm in Abbildung 7.3 in unser Labor transportierte, wo die Schwebungsfrequenz f_B mit einem Radiofrequenzzähler (Hewlett-Packard HP 53131A) gemessen wurde. Wie in den Experimenten der vorhergehenden Kapitel beschrieben, wurde auch hier in zwei Stufen die vierte Harmonische (bei 848 nm) unseres Methan-stabilisierten He-Ne-Lasers erzeugt. Zur Überbrückung der hier auftretenden Lücke zu 852 nm wurde ein optischer Frequenzkamm-Generator (OFCG, siehe Abschnitt 4.8) verwendet. Dazu wurde eine Laserdiode auf die vierte Harmonische des He-Ne-Lasers stabilisiert, welche das Licht für die Trägerfrequenz des OFCGs lieferte. Bei einer Modulationsfrequenz des OFCGs von 6.3418 GHz wurde bei Verwendung des 226. niederfrequenten Modulations-Seitenbandes ein Intervall von 1.433 246 THz überbrückt. Um sicherzustellen, daß das Schwebungssignal zwischen der Laserdiode bei 852 nm und dem Seitenband zuverlässig elektronisch gezählt werden konnte, wurde eine weitere Laserdiode bei 852 nm verwendet (in Abbildung 7.3 nicht gezeigt), die auf das Seitenband phasenstabilisiert wurde. Auf diese Weise konnte durch Zählen des phasenstabilisierten Schwebungssignals zwischen Laserdiode und Modulations-Seitenband (wie in den vorhergehenden Kapiteln mehrfach beschrieben) die zuverlässige Funktion dieser Stabilisierung

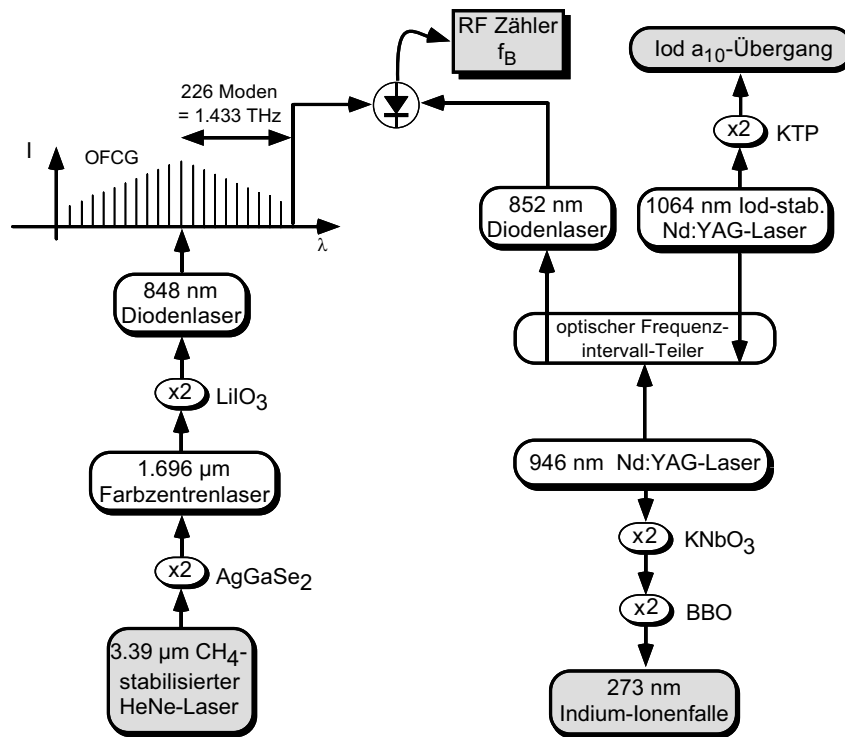


Fig. 7.3: Frequenzkette zur Messung der Frequenz $5s^2\ ^1S_0 \rightarrow 5s5p\ ^3P_0$ Übergangs. Die Frequenzkette verbindet die Frequenz von 88.4 THz eines Methan-stabilisierten He-Ne-Lasers bei 3.39 μm (links unten) und eines auf eine Iod-Linie bei 563 THz stabilisierten Nd:YAG-Lasers (1064 nm, rechts oben) phasenkohärent mit der Frequenz von 1 267 THz des Indium-Uhrenübergangs bei $\lambda = 237\text{ nm}$ (rechts unten). Eine Frequenzlücke von 1.433 THz wird von einem optischen Frequenzkamm-Generator (OFCG) überbrückt. Zur Bestimmung der Absolutfrequenz wird eine Schwebung f_B bei 852 nm mit einem Radiofrequenzzähler gezählt.

überprüft werden. So konnte die Laserdiode als „Verstärker“ des Seitenbandes fungieren und ein für die Zählung ausreichendes Signal-zu-Rausch-Verhältnis ($> 40\text{ dB}$ in 400 kHz Bandbreite) des Schwebungssignal mit dem Licht der Laserdiode aus dem Indium-Labor erzeugen.

Die Laserdiode bei 852 nm in Abbildung 7.3 ist Teil eines optischen Frequenzintervall-Teilers (Abschnitt 4.7) zwischen 852 nm und einem Iod-stabilisierten Nd:YAG-Laser bei 1064 nm, dessen (bis auf die Lokaloszillator-Frequenz) exakte Mittenfrequenz durch das Ausgangssignal des für die Indium-Spektroskopie verwendeten Nd:YAG-Lasers bei 946 nm gebildet wird (die vierte Harmonische dieses Lasers regt den In^+ Uhrenübergang an). Während die Frequenz des Nd:YAG-Lasers bei 1064 nm durch die Iod-Resonanz festgelegt ist, wird die Frequenz der Laserdiode bei 852 nm durch die Teilerstufe phasenstabilisiert.

Etwa 3 mW Leistung des Nd:YAG-Lasers aus interner Frequenzverdopplung [Bag97b] bei

532 nm werden in eine mit molekularem Iod gefüllte externe Fluoreszenz-Zelle mit 10 cm Länge eingestrahlt. Der Dampfdruck des Iods wird dabei mit einem Kühlfinger stabilisiert, dessen Temperatur auf besser als $\pm 0.05^\circ \text{C}$ geregelt wird. Ein Photomultiplier detektiert das Fluoreszenzsignal. Die Frequenz des Lasers wird dabei mit 455 Hz moduliert (bei einer Modulationsamplitude von 500 kHz) und mit dem Fehlersignal stabilisiert, das man durch die dritte Ableitung des Sättigungsspektroskopie-Signals der Resonanz der Hyperfein-Komponente des $\text{R}(56)32-0$ Übergangs erhält.

Im stabilisierten Zustand verbindet die Frequenzkette die unbekannte Frequenz des $^1S_0 \rightarrow ^3P_0$ Übergangs in In^+ , f_{In^+} , und die bekannten Frequenzen des He-Ne-Standards, $f_{\text{He-Ne}}$, und des Iod-Standards, $f_{a_{10}}$, durch die Gleichung

$$f_{\text{In}^+} = 8f_{\text{He-Ne}} + f_{a_{10}} + 2(f_B - 226f_{\text{mod}}) - f_{\text{LO}} . \quad (7.1)$$

Dabei ist f_B das mit einer Photodiode detektierte und mit dem Radiofrequenzzähler mit einer Torzeit von 0.5 s gemessene Schwebungssignal bei 852 nm, $f_{\text{mod}} = 6.3418 \text{ GHz}$ die Modulationsfrequenz des OFCGs und $f_{\text{LO}} = 831.5 \text{ MHz}$ der Beitrag sämtlicher Lokalszillator-Radiofrequenzen.

7.3 Ergebnisse der Messung

Innerhalb von mehreren Tagen der Frequenzmessung wurde der Nd:YAG-Uhren-Laser bei 946 nm insgesamt 40 Mal über die Indium-Resonanz bewegt. Während die Laserfrequenz in Schritten zu 8 Hz verstimmt wurde, wurde gleichzeitig die Anzahl der Anregungen des 3P_0 Niveaus und die Frequenz f_B des Schwebungssignals detektiert, aus dem gemäß Gleichung 7.1 die Absolutfrequenz berechnet werden kann. Da die Verweildauer des Lasers bei jedem Frequenzschritt gleich lange war, ist die Anzahl der Anregungen proportional zur Anregungswahrscheinlichkeit.

Abbildung 7.4 zeigt die beobachteten Anregungen des 3P_0 Niveaus als Funktion der Absolutfrequenz des Uhren-Lasers. Die Breite der Verteilung (12 kHz) wurde hauptsächlich durch die Kurzzeit-Instabilität des (modulierten) 1064 nm Iod-Standards verursacht. Aus den gemessenen Daten berechnen wir eine Absolutfrequenz des $\text{In}^+ 5s^2 \ ^1S_0 - 5s5p \ ^3P_0$ Übergangs von

$$f_{\text{In}^+} = 1\,267\,402\,452\,914(41) \text{ kHz} . \quad (7.2)$$

Der Hauptbeitrag der Gesamt-Unsicherheit ist durch die Unsicherheit in der Bestimmung der Frequenz der a_{10} -Hyperfeinkomponente gegeben (40 kHz) [Jun95a, Jun95b, Eic95]. Da bei dieser Messung mögliche verlorengegangene Zyklen in den Phasenstabilisierungen (im hochfrequenten Teil der Kette) nicht kontrolliert wurden, kann eine dadurch verursachte Systematik aus

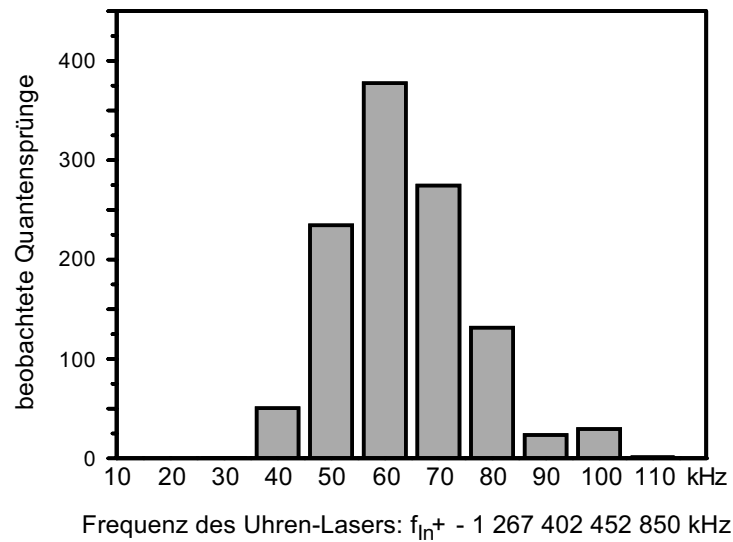


Fig. 7.4: Beobachtete Quantensprünge als Funktion der Absolutfrequenz des Uhren-Lasers (auf die Frequenz des In^+ -Übergangs hochgerechnet).

den Meßdaten nur grob mit maximal 10 kHz abgeschätzt werden. Sämtliche anderen Systematiken sind bei dem momentanen Genauigkeits-Niveau vernachlässigbar.

Um systematische Frequenzverschiebungen der Iod-Linie zu überprüfen, wurde die Reproduzierbarkeit dieser Referenz durch Vergleich zweier verschiedener Zellen getestet, von denen eine an der PTB direkt vor der Messung und die andere kurz zuvor am Institut für Laserphysik, Novosibirsk, kalibriert worden waren. Innerhalb der Auflösung, die durch die Stabilität des Iod-Standards gegeben war, konnten keine Diskrepanzen beobachtet werden. Bei einer Temperatur der Zelle von -14°C trägt die Druckverschiebung mit weniger als 1 kHz zur Systematik bei [Jun95a, Jun95b, Eic95], während der AC-Stark-Effekt bei 3 mW Leistung mit maximal 600 Hz abgeschätzt werden kann. Diese Systematiken sind also vernachlässigbar auf dem momentanen Genauigkeits-Niveau.

Gegenüber früheren Frequenzmessungen des Indium-Uhrenübergangs bedeutet diese Messung eine Verbesserung der Genauigkeit um mehr als drei Größenordnungen. Eine interferometrische Messung von Larkins und Hannaford bestimmte die Frequenz zu $1\,267\,402.18(21)$ GHz [Lar93], während frühere doppelresonante Experimente in Garching die Frequenzen $1\,267\,402.24(18)$ GHz [Pei95] und $1\,267\,402.36(8)$ GHz [Abe98] lieferten.

Kapitel 8

Ausblick

Mit dem phasenkohärenten Vergleich der Frequenz des Wasserstoff $1S$ - $2S$ Übergangs im Vakuum-Ultraviolett mit der Radiofrequenz einer Cäsium-Atomuhr konnte erstmals eine neue, vielseitig anwendbare Technik zur Frequenzkonversion zwischen Radiofrequenzbereich und optischem Bereich erfolgreich demonstriert werden. Die phasenkohärente Überbrückung eines Frequenzintervalls von 45.2 THz durch die longitudinalen Moden eines Femtosekundenlasers spielt dabei die Schlüsselrolle.

Nach Abschluß der Experimente dieser Arbeit setzte sich die dadurch angestoßene rasante Entwicklung weiter fort: Inzwischen konnte mit Femtosekundenlasern kürzerer Pulsdauer und durch spektrale Verbreiterung in sogenannten photonischen Kristall-Fasern [Kni96, Wad99, Ran99] sowohl in Garching (R. Holzwarth, Th. Udem) als auch in der Gruppe von Prof. J. Hall in Boulder, Colorado, ein Frequenzkamm von etwa 300 THz erzeugt werden, der eine gesamte Oktave zwischen $\lambda = 1064$ nm und 532 nm überspannt (Abbildung 8.1). Damit ist nun jede Frequenz dieser Oktave prinzipiell mit der Genauigkeit der verwendeten Radiofrequenz meßbar. Obwohl noch einige interessante Fragen offen sind, wie z. B. ein detailliertes Verständnis der Rauscheigenschaften des Frequenzkamms, ist das Ziel erreicht, eine kompakte, zuverlässig über längere Zeit betreibbare und einfach zu bedienende Frequenzkette zu bauen, die als Uhrwerk in zukünftigen optischen Atomuhren dienen kann.

Im Moment wird in Garching ein Experiment durchgeführt, in dem der neue optische Frequenz-Synthesizer und die in dieser Arbeit verwendete Frequenzkette verglichen werden sollen. Damit wird zum ersten Mal ein Vergleich zweier verschiedener Ketten möglich sein, der Aufschluß über den Beitrag des Rauschens von Frequenzketten bei optischen Frequenzmessungen geben wird. Ein erster Hinweis dafür liegt schon aus der Frequenzmessung mit der Cäsium-Fontänenuhr vor: Trotz der ausgezeichneten Stabilität der Cäsium-Fontänenuhr war noch kein Beitrag der Frequenzkette zum Rauschen der Meßdaten erkennbar (Kapitel 6). Mit diesen Experimenten

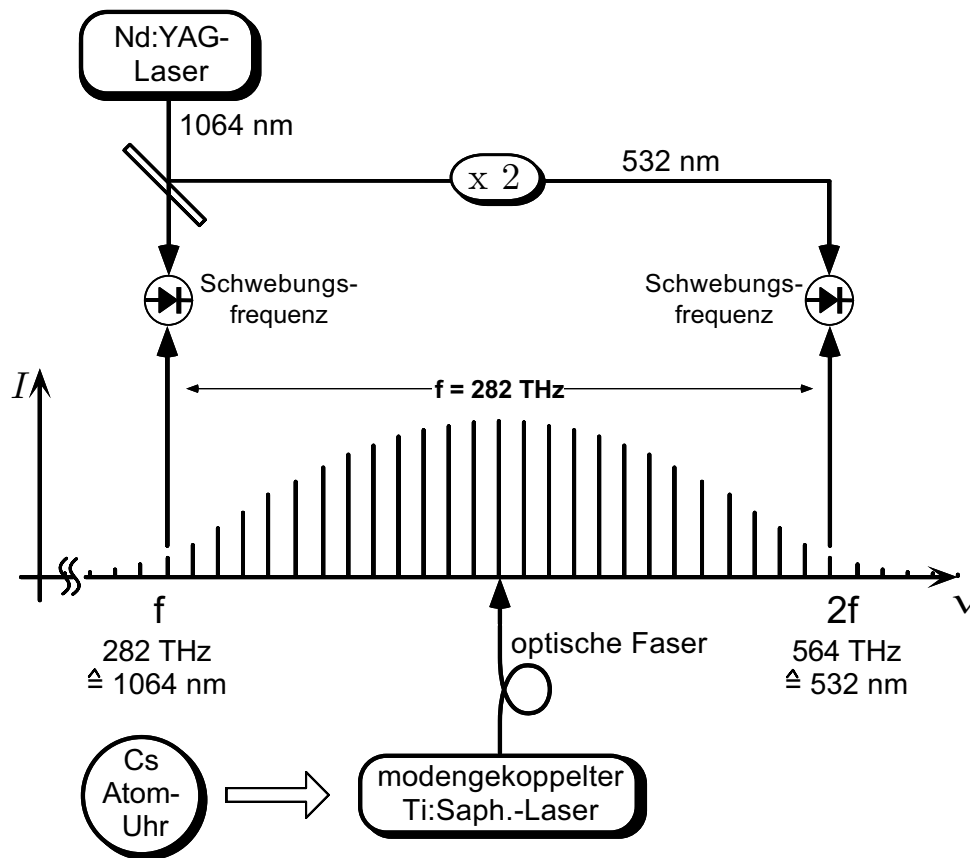


Fig. 8.1: Kompakte Frequenzkette auf Basis der Messung eines optischen Intervalls zwischen Laser-Harmonischen (Fundamentale f und zweite Harmonische $2f$ eines Nd:YAG-Lasers). Das Ausgangssignal eines Radiofrequenz-Synthesizers, der auf die Referenzfrequenz einer Cs-Atomuhr stabilisiert ist, wird mit Hilfe eines Femtosekundenlasers und nachfolgender spektraler Verbreiterung in einer optischen Faser in einem Schritt in eine optische Frequenz von 282 THz konvertiert (Radiofrequenz=Abstand der Moden des Frequenzkamms). Damit wird eine gesamte optische Oktave durch einen Kamm optischer Referenzfrequenzen überdeckt, die alle mit der relativen Genauigkeit der Radiofrequenz bekannt sind.

könnte jedoch in nächster Zukunft die „Pionier-Periode“ der Entwicklung neuer Meßmethoden für optische Frequenzen zu einem erfolgreichen Abschluß kommen.

Anmerkung nach Beendigung der Dissertation:

Der Vergleich der zwei verschiedenen Garchinger Frequenzketten konnte inzwischen mit einer Genauigkeit von 5×10^{-16} bestätigen, daß beide Ketten Radiofrequenzen mit dem erwarteten Multiplikationsfaktor in optische Frequenzen konvertieren (R. Holzwarth et al., bei Phys. Rev. Lett. zur Veröffentlichung eingereicht). Damit können gleichzeitig kohärenzerstörende Einflüsse der in der Faser stattfindenden Prozesse auf die Meßgenauigkeit innerhalb dieses

Genauigkeitsniveaus ausgeschlossen werden.

Eine Weiterentwicklung kann die Ausdehnung kohärenter Frequenzmessungen auf den extremen UV- und weichen Röntgenbereich betreffen. Neuere Experimente geben Aufschluß über notwendige Kohärenzeigenschaften: Für Paare von Weißlichtkontinuum-Pulsen, welche durch Fokussierung des Lichts eines verstärkten Titan:Saphir-Lasers auf zwei getrennte Punkte in einem nichtlinearen Medium erzeugt wurden, konnte ein hoher Grad an gemeinsamer Phasenkohärenz nachgewiesen werden [Bel98], trotz Komplikationen wie Selbst-Fokussierung, stimulierter Raman- und Brillouin-Streuung oder der Ausbildung von Schockwellen. Ähnliche Experimente mit hohen Harmonischen, die in Gas-Strömen erzeugt wurden [Bel00] legen nahe, daß kohärente Frequenzmessung auch auf diese Bereiche ausgedehnt werden könnte. Experimente, in denen hohe Harmonische eines Titan:Saphir-Lasers bis zur Ordnung 300 beobachtet werden konnten (entsprechend einer Photonen-Energie von 460 eV) [Cha97], legen sogar die Idee nahe, die zur Mößbauer-Spektroskopie verwendeten Röntgen-Linien im Kiloelektronenvolt-Bereich mit sehr hohen Güten der kohärenten Frequenzmessung zugänglich machen zu wollen.

Bei der erreichten Vereinfachung der Meßmethoden für optische Frequenzen kann sich die weitere Entwicklung auf die Anwendung dieser Methoden in Physik und Technik konzentrieren. Mit steigender Genauigkeit werden Messung möglich, die immer tiefere Einblicke in die Theorien gewähren, welche die Basis der Physik bilden. So kann durch Vergleich der Frequenzen des $1S$ - $2S$ Übergangs in Wasserstoff und Antiwasserstoff ein Test der CPT-Symmetrie durchgeführt werden (Experimente am CERN sind in Vorbereitung [Ead99]). Zeitlich und örtlich unabhängige Messungen dieser UV-Frequenzen durch Vergleich mit einer Cäsium-Uhr können das Experiment vereinfachen. Durch Vergleich von Frequenzstandards, deren Frequenz in verschiedener Weise von der Feinstrukturkonstante α abhängt könnten mögliche kleine zeitliche Veränderungen von α [Dzu99] aufgedeckt werden. Dies könnte zum Beispiel durch Vergleich des $1S$ - $2S$ Übergangs der Grobstruktur des Wasserstoffs mit der Hyperfeinstruktur des Cs-Grundzustandes geschehen. Die erforderlichen Genauigkeiten sind jedoch enorm: Labor-Messungen setzen eine obere Grenze für $\dot{\alpha}/\alpha$ von 3.7×10^{-14} [Pre95b], andere (z. B. astronomische) Messungen sehen die Grenze noch niedriger. Durch die in dieser Arbeit beschriebene Methode der Frequenzmessung rücken diese Genauigkeiten in den Bereich des Erreichbaren.

Von der Seite der Wasserstoff-Spektroskopie sind in naher Zukunft neue Antworten auf die Frage der Gültigkeit der Quantenelektrodynamik gebundener Systeme zu erwarten. Diskrepanzen zwischen perturbativen Rechnungen höherer Ordnung und nichtperturbativen Rechnungen [Mal98] haben Zweifel an der Haltbarkeit des störungstheoretischen Ansatzes zur Berechnung der Strahlungs-Korrekturen aufkommen lassen. Eine von Prof. D. Kleppner am Massachusetts Institute of Technology geplante Messung von Übergängen zwischen angeregten Zuständen an ultrakalten Wasserstoffatomen [Kle] könnte die experimentelle Bestimmung der Lamb-Verschiebung verbessern. Zusammen mit einem verbesserten Wert des Proton-Ladungsradius,

der durch Laserspektroskopie der $2S$ Lamb-Verschiebung an myonischem Wasserstoff in einem Experiment am Paul-Scherrer-Institut bestimmt werden soll [Taq99], werden QED-Tests auf einem Niveau möglich, das Aufschluß über diese Frage geben wird.

Für die Femtosekunden-Chemie und Experimente mit extrem kurzen Lichtpulsen wird wahrscheinlich die in Abschnitt 2.3 vorgeschlagene Messung des Puls-zu-Puls-Phasenschlupfes in dem von einem modengekoppelten Laser emittierten Pulszug von Bedeutung sein. Wenn immer kürzere Pulse mit nur wenigen optischen Zyklen für Experimente verwendet werden, wird sicherlich die Phasenlage des elektrischen Feldes innerhalb der Einhüllenden von Bedeutung sein. Die Messung optischer Frequenzen läßt sich als eine Messung der Frequenz dieses Phasenschlupfes interpretieren. Diese läßt sich dann mit den in Abschnitt 4.2 beschriebenen Methoden stabilisieren, so daß der Einfluß der Phasenlage auf die Experimente untersucht oder eliminiert werden kann. Experimente zur direkten Messung dieser Phase sind in Vorbereitung [Die00]. Als Konsequenz vollständig kontrollierter Pulszüge wäre für die Femtosekunden-Chemie dann als neuartige Spektroskopiemethode z. B. „Ramsey-artige“ kohärente Spektroskopie durch mehrfache Anregung der Moleküle mit aufeinanderfolgenden, vollständig charakterisierten Pulsen denkbar.

Auf der Kontrolle der absoluten Phasenlage des elektrischen Felds innerhalb der Einhüllenden beruht auch die Verwirklichung einer der größten gegenwärtigen Herausforderungen der Ultrakurzpuls-Physik und nichtlinearen Optik: die reproduzierbare direkte Erzeugung von einzelnen Attosekunden-Röntgenpulsen (mit bis zu mehr als der dreihundertfachen Energie der Laserphotonen) durch Ionisation von Atomen durch extrem hohe Lichtfelder, bei denen die elektronische Bewegung direkt durch das Lichtfeld kontrolliert wird [Chr97].

Auch schon die Möglichkeit der vollständigen Stabilisierung der Moden eines Frequenzkamms, dessen Spektrum in einer photonischen Kristall-Faser auf mehr als eine Oktave verbreitert wurde, könnte dazu genutzt werden, ultrakurze Pulse im Attosekundenbereich zu erzeugen (ohne daß dabei die absolute Phasenlage kontrolliert werden muß). Dazu müßte man gezielt die Phasen der einzelnen Frequenzkomponenten über die gesamte Bandbreite des Spektrums beeinflussen, so daß bei „richtiger“ relativer Phasenbeziehung ein bandbreitenbegrenzter Puls entsteht. Zur Beeinflussung der Phase könnte dabei eventuell auf Verfahren zurückgegriffen werden, die in der Femtochemie zur Pulsformung von Femtosekundenpulsen seit einigen Jahren verwendet werden, welche einzeln ansteuerbare Felder eines Flüssigkristall-Modulators zur individuellen Verzögerung der durch ein Gitter örtlich getrennten spektralen Komponenten eines Pulses verwenden (siehe z. B. [Wei90]).

Denkbare weitere Anwendung von Frequenzmessung mit modengekoppelten Lasern in Physik und Technik sind zahlreich: So könnte die optische Astronomie in Zukunft möglicherweise von „very long base-line“-Interferometrie in ähnlicher Weise profitieren wie die Radioastronomie

heute. Auch genauere Ortsbestimmungen durch eine Verbesserung der Stabilität und Auflösung des GPS-Systems mit optischen Atomuhren lassen eine direkte Navigation, z. B. von Flugzeugen, durch GPS ohne Hilfe differentieller Methoden möglich werden. Nicht zuletzt könnten auch Netzwerke für weltweiten Datenaustausch zwischen Computern und in der Telekommunikation Nutzen aus der Verfügbarkeit präziserer und stabilerer Frequenz-Referenzen ziehen. Durch präzisere Synchronisation von Sendern und Empfängern und durch eine höhere Dichte der Kanäle in der optischen Datenübertragung könnte die Übertragungsrate und damit die Kapazität der Datennetze erhöht werden.

Anmerkung nach Beendigung der Dissertation:

Die Experimente dieser Arbeit haben eine rasant schnelle Weiterentwicklung der neuen Frequenzmeßtechnik inspiriert, die jetzt mit der Entwicklung einer „Frequenzkette“ möglicherweise ihren Höhepunkt erreicht hat, welche nur noch einen einzigen Laser benötigt (siehe Abschnitt 2.3), d. h. sogar selbst den in Abbildung 8.1 gezeigten Nd:YAG-Laser entbehren kann. Sämtliche Konsequenzen und Folgeentwicklungen aus dieser radikalen Vereinfachung eines gesamten Forschungsgebietes, von denen einige Möglichkeiten in diesem Ausblick genannt sind, lassen sich mit Sicherheit heute noch nicht absehen. Eventuell könnte dem Femtosekundenlaser als Frequenzmeßinstrument eine ähnliche Verbreitung in verschiedenste Wissenschafts- und Technikbereiche bevorstehen wie dem Raster-Elektronenmikroskop.

Anhang A

In den Experimenten verwendete Frequenzintervall-Teiler

Sowohl in den Experimenten zur Überprüfung der Integrität des Frequenzkamms (Abschnitt 4.9) als auch bei der Messung der $1S$ - $2S$ Übergangs-Frequenz in Wasserstoff (Kapitel 6) wurden optische Frequenzintervall-Teiler verwendet. Das generelle Prinzip der Teiler ist in Abschnitt 4.7 beschrieben. In diesem Anhang werden die in den Experimenten eingesetzten Intervall-Teiler näher beschrieben und experimentelle Eckdaten genannt.

In unseren Experimenten zur Überprüfung der Integrität des Frequenzkamms in Abschnitt 4.9 wurden Intervalle bis 20 THz überbrückt. Die dabei eingesetzten Intervall-Teiler (siehe auch [Ude97b, Wyn93]) waren sehr kompakt aufgebaut: Die verwendeten Laser im Bereich von 850 nm waren ausschließlich kompakte gitterstabilisierte Laserdioden [Ric95] (Firma SDL, Ausgangsleistung ohne Gitterstabilisierung bis 100 mW, mit Gitterstabilisierung bis etwa 30 mW). Für die nichtlinearen Prozesse wurden 5 mm lange KNbO_3 Kristalle im A-Schnitt verwendet, deren unkritische Phasenanpassung durch Temperatur bei etwa -5°C durch ein Peltier-Element erfolgt. Der extrem hohe Konversions-Koeffizient erlaubt erfahrungsgemäß bei dem teilweise stark von einer TEM_{00} -Mode abweichenden Strahlprofil der Laserdioden Konversionen bis zu $1\% \text{ W}^{-1}$ im einfachen Durchgang. Mit den dabei erzeugten Signalen von typischerweise einigen Mikrowatt Leistung wird ein für die Phasenstabilisierung weit ausreichendes Signal-zu-Rausch-Verhältnis der Schwebungs-Signale erreicht.

Bei der Messung der $1S$ - $2S$ Übergangs-Frequenz in Wasserstoff (Kapitel 6) wurde ein Teiler für ein sehr großes Frequenzintervall von 528 THz benutzt, der die Mittenfrequenz ($\lambda = 851 \text{ nm}$) zwischen $\lambda = 3.39 \mu\text{m}$ und $\lambda = 486 \text{ nm}$ erzeugt (vergleiche auch [Ude97b, Wyn93]). Die Summenfrequenz ($\lambda = 425 \text{ nm}$) für diesen Teiler wird ohne Leistungsüberhöhung in einem LiNbO_3 -Kristall erzeugt, mit unkritischer Phasenanpassung bei einer Temperatur von etwa 268°C in einem Ofen. Die Effizienz der Summenfrequenz von $P_{\omega_1+\omega_2} = 3.6 \times 10^{-4} \text{ W}^{-1} P_{\omega_1} P_{\omega_2}$ [And93]

beträgt nur etwa 2% des theoretisch erwarteten Werts. Dies ist wohl hauptsächlich durch die bei den stark unterschiedlichen Frequenzen schwierig optimierbare Modenanpassung der Strahlen und eventuelle geringe Temperatur-Inhomogenitäten über den Kristall begründet, die sich bei dieser hohen Phasenanpassungs-Temperatur schwierig vermeiden lassen. Um ein genügend starkes Signal zu erzeugen, wird die Ausgangsleistung des in Kapitel 6 beschriebenen Methan-stabilisierten He-Ne-Lasers durch einen Transfersoszillator (He-Ne-Laser mit geheizter Kathode [And93]) auf 20 mW verstärkt, wovon 10 mW für diesen Prozess genutzt werden. Die zweite Harmonische der Mittenfrequenz des Intervalls wird, wie oben beschrieben, mit einer Laserdiode bei 848 nm mit Hilfe eines KNbO_3 -Kristalls erzeugt. Ein für die Phasenstabilisierung ausreichendes Signal-zu-Rausch-Verhältnis kann schon mit einer Leistung des Lichts bei 486 nm von etwa 30 mW erreicht werden, die durch einen Strahlteiler von der Ausgangsleistung des Farbstoff-Lasers für die Wasserstoff-Spektroskopie abgezweigt wird und durch eine polarisationserhaltende optische Faser aus dem nebenan liegenden Wasserstoff-Labor unser Labor erreicht.

Für alle in den Experimenten in Frequenzintervall-Teilern verwendeten Phasenstabilisierungen wurden die in Abschnitt 4.5 beschriebenen digitalen Phasenregelkreise [Pre95a] verwendet.

Anhang B

Die Propagations-Gleichung für Pulse

In diesem Anhang wird eine in Abschnitt 3.1 verwendete Gleichung (Gl. 3.6) hergeleitet, welche die Propagation eines Pulses in einem linearen dispersiven Medium beschreibt.

Die Dispersion eines Mediums wird durch die Frequenzabhängigkeit der Wellenzahl $k(\omega) = n(\omega)\omega/c$ beschrieben. Sei ein Puls mit der optischen Trägerfrequenz ω_0 und (komplexen) Einhüllenden-Funktion $A(z, t)$ gegeben durch den Realteil von

$$E(z, t) = A(z, t)e^{i(k_0 z - \omega_0 t)}, \quad (\text{B.1})$$

wobei $k_0 = k(\omega_0)$ abgekürzt wurde. Die Propagation $z = 0 \rightarrow z$ kann nun mit Hilfe der Fourier-Transformation beschrieben werden.

Die zeitliche Fouriertransformierte des elektrischen Felds ist gegeben durch

$$\tilde{E}(z, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E(z, t) e^{i\omega t} dt = \tilde{A}(z, \omega - \omega_0) e^{ik_0 z}. \quad (\text{B.2})$$

Da die örtliche Propagation der Fourierkomponenten durch die Dispersionsrelation $k = k(\omega)$ bestimmt ist,

$$\tilde{E}(z, \omega) = \tilde{E}(z = 0, \omega) e^{ik(\omega)z}, \quad (\text{B.3})$$

propagiert die Einhüllende durch

$$\tilde{A}(z, \Omega) = \tilde{A}(z = 0, \Omega) e^{i(k(\omega) - k_0)z}. \quad (\text{B.4})$$

Dabei wurde die Abkürzung $\Omega := \omega - \omega_0$ verwendet.

Transformiert man diese Gleichung durch

$$A(z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{A}(z, \Omega) e^{-i\Omega t} d\Omega \quad (\text{B.5})$$

zurück in den Zeitraum, so ergibt sich die gesuchte Gleichung für die räumliche Propagation des Pulses mit:

$$A(z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{A}(z = 0, \Omega) e^{i((k(\omega) - k_0)z - \Omega t)} d\Omega . \quad (\text{B.6})$$

Durch Einsetzen der Transformierten $\tilde{A}(z = 0, \Omega)$ läßt sich die Pulsform $A(z, t)$ allein durch das zeitliche Puls-Profil für $z = 0$ ausdrücken:

$$A(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} A(z = 0, t') e^{i((k(\omega) - k_0)z + \Omega(t' - t))} dt' d\Omega . \quad (\text{B.7})$$

Anhang C

Die Frequenzketten-Gleichung

Die Frequenzketten-Gleichung der in Kapitel 6 beschriebenen Frequenzkette zur Messung der Frequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in Wasserstoff stellt eine Beziehung her zwischen den gemessenen Frequenzen der Radiofrequenz-Zähler, f_{c1} , f_{c2} , und der Frequenz f_H des $1S_{1/2}$ ($F = 1$) $\rightarrow 2S_{1/2}$ ($F' = 1$) Intervalls. Anhand der funktionalen Darstellung (Abbildung C.1) der Frequenzkette soll diese Frequenzketten-Gleichung (Gleichung 6.4) hergeleitet werden. Das Schema ist gegenüber Abbildung 1.1 und 6.3 spiegelverkehrt, so daß hier (im allgemeinen) die Frequenzen nach rechts zunehmen! Die Rechtecke symbolisieren dabei Laser-Frequenzen mit den Bezeichnungen, wie sie im folgenden verwendet werden, große Pfeile den Weg des Lichts. Kreise mit Kreuzen (Symbol für Mischer) stellen Schwebungssignale dar, die kleinen davon ausgehenden Pfeile zeigen auf den damit stabilisierten Oszillator. Die dabeistehenden Zahlen geben die dort verwendete Lokaloszillator-Frequenz in MHz (= Frequenzdifferenz der beteiligten Laser) an, welche mit z.B. LO_{ld973} bezeichnet werden sollen (im Index der stabilisierte Laser).

Im Diagramm von unten ausgehend, von den Frequenzen der drei benutzten Moden des Frequenzkamms f_{mod973} bei 973 nm, $f_{mod973} + N_2 f_r$ bei 851 nm und $f_{mod973} + N_1 f_r$ bei 848 nm gehen drei Zweige aus, deren Gleichungen aufgestellt werden sollen. Innerhalb der Zweige nehmen die Frequenzen jeweils von links nach rechts zu. Im linken Zweig ist die Laserdiode mit f_{ld973} genau 20 MHz unterhalb der Frequenz der Mode des Kamms stabilisiert. Der Frequenzkamm ist so stabilisiert, daß deren zweite harmonische Frequenz 128 MHz (Lokaloszillator hier LO_{mira} genannt) oberhalb der Frequenz des Spektroskopie-Farbstofflasers liegt. Die Gleichung für die Frequenz des Farbstofflasers aus diesem Zweig lautet damit:

$$f_{dye} = 2(f_{mod973} - LO_{ld973}) - LO_{mira} . \quad (C.1)$$

Im mittleren Zweig wird die Summenfrequenz aus dem Farbstofflaser und einem He-Ne-Verstärker-Laser f_{phn} gebildet, der auf den Methan-stabilisierten He-Ne-Laser stabilisiert ist

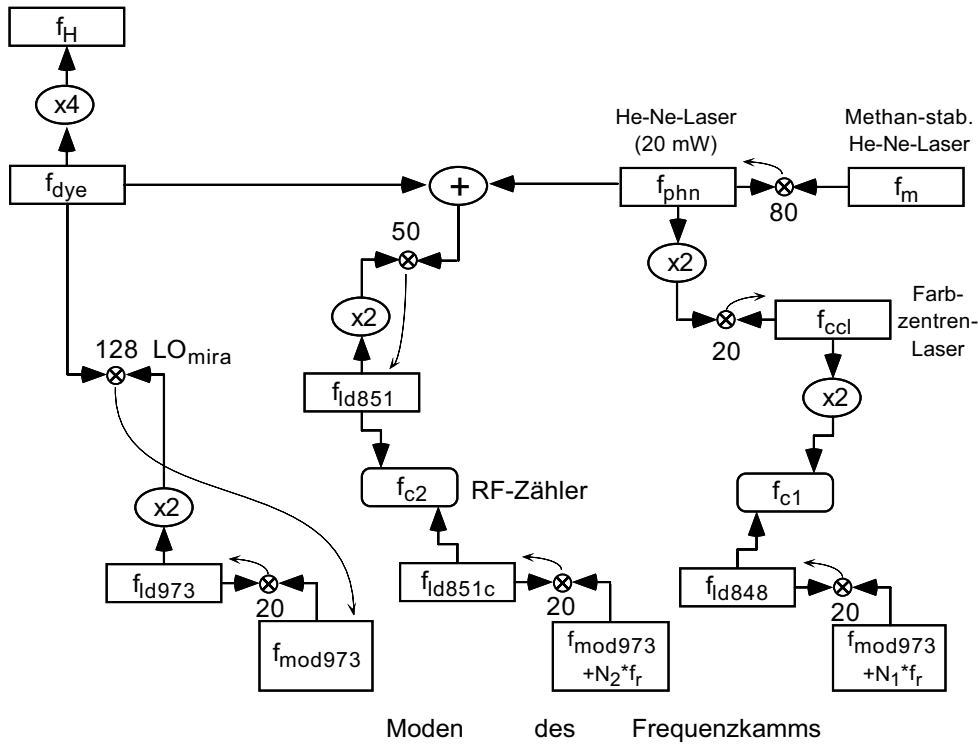


Fig. C.1: Funktionale Darstellung der Frequenzkette der Wasserstoff 1S-2S Messung für die Herleitung der Frequenzketten-Gleichung. Die Frequenzen nehmen (mit Ausnahme der an der Summenfrequenz beteiligten Oszillatoren) immer von links nach rechts zu, die Symbole sind im Text erklärt.

(Frequenzintervall-Teiler aus f_{dye} , f_{phn} und f_{ld851}). Die Schwebung zwischen den zwei Laserdioden bei 851 nm wird mit einem Radiofrequenz-Zähler gezählt. Die Gleichung dieses Zweiges lautet:

$$f_{\text{dye}} + f_{\text{phn}} = 2(f_{\text{mod973}} + N_2 f_r - \text{LO}_{\text{ld851c}} - f_{\text{c2}}) + \text{LO}_{\text{ld851}} . \quad (\text{C.2})$$

Analog erhält man aus dem rechten Zweig die Frequenz der Mode als Funktion von f_{phn} :

$$f_{\text{mod973}} + N_1 f_r = 2(2f_{\text{phn}} + \text{LO}_{\text{ccl}}) - f_{\text{c1}} + \text{LO}_{\text{ld848}} . \quad (\text{C.3})$$

Aus den Gleichungen C.1 und C.2 kann nun durch Differenzbildung die Frequenz des He-Ne-Verstärker-Lasers hergeleitet werden. Durch diese beiden Gleichungen wird die Messung der Frequenz des He-Ne-Lasers mit Hilfe des optischen Intervalls von 44.2 THz beschrieben:

$$f_{\text{phn}} = 2N_2 f_r - 2f_{\text{c2}} + \text{LO}_{\text{mira}} - 2\text{LO}_{\text{ld851c}} + \text{LO}_{\text{ld851}} + 2\text{LO}_{\text{ld973}} . \quad (\text{C.4})$$

Die Messung der Frequenzlücke von 1 THz wird durch die Differenz aus rechtem und mittlerem Zweig beschrieben. Durch Einsetzen von f_{mod973} aus Gleichung C.3 in Gleichung C.2 erhält

man:

$$f_{\text{dye}} = 7f_{\text{phn}} + 2(N_2 - N_1)f_r - 2f_{c1} - 2f_{c2} - 2\text{LO}_{\text{ld851c}} + \text{LO}_{\text{ld851}} + 4\text{LO}_{\text{ccl}} + 2\text{LO}_{\text{ld848}} . \quad (\text{C.5})$$

Durch diese Gleichung wird der Zusammenhang zwischen dem Methan-stabilisierten He-Ne-Laser ($f_{\text{phn}} + 80$ MHz) und dem $1S$ - $2S$ Intervall ($4f_{\text{dye}}$) beschrieben, wie er im wesentlichen auch schon in der vorherigen Version der Frequenzkette bestand [Ude97a], in der der He-Ne-Laser die Referenz-Frequenz lieferte, damals jedoch mit erheblich aufwendigerer Messung der Frequenzlücke.

Durch Kombination der beiden Gleichungen erhält man die Frequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs als Funktion der Pulswiederholrate, der gezählten Schwebungsfrequenzen und Lokalszillatoren:

$$f_{\text{H}} = (-8N_1 + 64N_2)f_r - 8f_{c1} - 64f_{c2} + 28\text{LO}_{\text{mira}} - 64\text{LO}_{\text{ld851c}} + 32\text{LO}_{\text{ld851}} + 56\text{LO}_{\text{ld973}} + 16\text{LO}_{\text{ccl}} + 8\text{LO}_{\text{ld848}} . \quad (\text{C.6})$$

Durch Einsetzen der Lokalszillatoren $\text{LO}_{\text{mira}} = 128$ MHz, $\text{LO}_{\text{ld851c}} = \text{LO}_{\text{ld973}} = \text{LO}_{\text{ccl}} = \text{LO}_{\text{ld848}} = 20$ MHz und $\text{LO}_{\text{ld851}} = 50$ MHz sowie der Modenzahlen $N_1 = 595\,351$, $N_2 = 581\,421$ und der Pulswiederholrate $f_r = 76$ MHz erhält man zuletzt die Frequenzketten-Gleichung 6.4:

$$\begin{aligned} f_{1S-2S} &= -8f_{c1} - 64f_{c2} + (-8N_1 + 64N_2)f_r + 5.504 \text{ GHz} \\ &= -8f_{c1} - 64f_{c2} + 2466.063\,84 \text{ THz} . \end{aligned} \quad (\text{C.7})$$

Anhang D

Kalibrierung der Cs-Uhr mit dem GPS-Zeitsignal

Die Frequenz-Genauigkeit (engl. accuracy) der für die Experimente verwendeten kommerziellen Cäsium-Uhr HP 5071A (Option 001, mit „high performance tube“) der Firma Hewlett-Packard wird mit 1×10^{-12} angegeben. Die Langzeit-Stabilität, der Uhr (siehe Abbildung 6.7) ist jedoch mit $\leq 2 \times 10^{-14}$ spezifiziert. Durch Kalibration der Cs-Uhr läßt sich daher ihre Genauigkeit auf etwa diesen Wert verbessern, der nach etwa 2 Tagen Mittelungszeit erreicht wird (Allan-Standard-Abweichung $\sigma_y(\tau) \leq 2 \times 10^{-14}$ für $\tau \geq 2$ Tage). Für Meßzeiten von weniger als etwa 100 000 s (aber > 10 s) ist das Verhalten der Uhr durch Schrotrauschen der Detektion der Cs-Atome gekennzeichnet und wird laut Spezifikationen durch $\sigma_y(\tau) \leq 8.5 \times 10^{-12} \tau^{-1/2}$ beschrieben, wobei jedoch die Spezifikationen meist unterschritten werden.

Wurden früher Kalibrationen und Uhren-Vergleiche vor allem durch den Transport von Frequenz-Standards ausgeführt, so wird heute dafür fast ausschließlich das Zeitsignal des „NAVSTAR Global Positioning Systems“ (GPS) verwendet. Dieses vom „U.S. department of defence“ für militärische Zwecke eingerichtete und mit 24 Satelliten operierende Navigationssystem erlaubt mit einem geeigneten Empfänger die präzise Bestimmung der Ortskoordinaten des Empfängers sowie der momentanen Zeit. Eine gute Übersicht über das System findet man z. B. in [Fis95], über Zeit-Anwendungen des Systems in [Hew97].

Die Zeitinformation des Systems ist langfristig an die Cäsium-Uhr („Master Clock“) des U.S. Naval Observatory gekoppelt, die wiederum ständig mit der Weltzeit UTC („Universal Time Coordinated“) verglichen wird. Dieser Vergleich wird monatlich im Internet in dem Bericht „Circular T“ des Bureau International des Poids et Mesures (BIPM), Paris, veröffentlicht [Cir]. Auf diese Weise ist ein direkter Vergleich der Zeit bzw. Frequenz mit der genauesten Realisierung der SI-Sekunde durch UTC über das GPS-System möglich. Allerdings ist die Stabilität des GPS-Zeitsignal durch künstliches Phasenrauschen absichtlich verschlechtert (kodierte), um

militärischen Gebrauch der Genauigkeit ausschließlich den U.S.-Streitkräften mit Hilfe von Dekodern zu ermöglichen („Selective Availability, SA“). Die Schwankungen der Zeitsignale betragen dabei bis zu 340 ns (2σ , [Hew97]) und werden bei Mittelungszeiten von mehr als etwa 10 min gut durch weißes Phasenrauschen beschrieben.

Die genauesten Zeit- und damit Frequenz-Vergleiche werden jedoch ermöglicht, wenn die Zeitinformation des GPS-Systems *nicht* verwendet wird, sondern das System nur zum Transfer benutzt wird. Bei dieser „common-view“ genannten Methode wird von zwei zu vergleichenden Uhren das Zeitsignal eines gemeinsam sichtbaren Satelliten mit der eigenen Zeitinformation verglichen. Durch Differenz-Bildung der aufgezeichneten Informationen wird der Vergleich der Zeit beider Uhren auf wenige Nanosekunden genau ermöglicht, ohne daß die GPS-Zeitinformation mit ihren systematischen Abweichungen benutzt wird. Die Ermittlung und Verteilung der Weltzeit UTC durch das BIPM findet auf diese Weise statt.

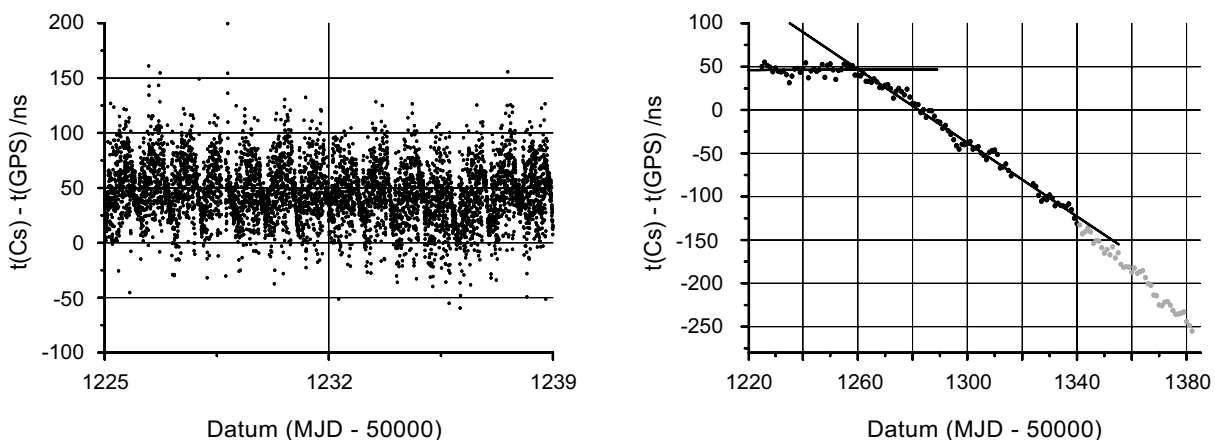


Fig. D.1: Zeitintervall zwischen dem 1 pps-Signal der Cs-Uhr (Start) und des GPS-Empfängers (Stop). Links: Werte gemittelt über 200 s, Ausschnitt: zwei Wochen, modifiziertes julianisches Datum (MJD) 51 225 - 51 239 (16.2.1999 - 2.3.1999). Rechts: Werte gemittelt über 1 Tag, gesamter Beobachtungszeitraum MJD 51 225-51 382 (16.2.1999 - 22.7.1999). Abschnittsweise angepaßte Geraden für den Zeitraum MJD 51 225-51 256 und 51 257 - 51 340, entsprechend relativen Frequenz-Unterschieden zwischen Cs-Uhr und GPS von $< 10^{-15}$ bzw. 2.5×10^{-14} .

Da für die Methode des „common view“ spezielle kostenaufwendige Empfänger notwendig sind, die die gesamten Informationen der Satelliten-Signale aufzeichnen, wurde für die Kalibrierung unserer Uhr das GPS-Zeitsignal selbst ausgewertet. Für die Kalibrierung berechneten wir eine Korrektur der mit der Cs-Uhr gemessenen Frequenzen, veränderten jedoch den Gang der Uhr nicht. Über einen Zeitraum von 6 Monaten wurden die Sekunden-Marken eines GPS-Empfängers (Firma Hameg, Modell HM 8125) mit den Sekunden-Marken der Cs-Atomuhr

verglichen. Dabei wurde mit einem Zeitintervall-Zähler (Hewlett-Packard HP 53131A) das Intervall zwischen Start-Impuls der Cs-Uhr und Stop-Impuls des GPS 1 pps-Signals (1 Puls pro Sekunde-Signals) gemessen. Ein zweiwöchiger Ausschnitt der über 200 s gemittelten Daten ist in Abbildung D.1 (links) gezeigt. Die Daten zeigen eine periodische Struktur der Rauschamplitude, die eine Dauer von einem Sternentag hat, der Zeit, in der sich die Konstellation der Satelliten exakt wiederholt.

Eine Analyse des Rauschens zeigt, daß die Allan-Standardabweichung¹ des Zeitintervalls, $\sigma_x(\tau)$, für Zeiten bis zu einem Tag beständig fällt, bis zu einem Wert von etwa 8 ns, und ab dann wieder ansteigt. Dies kann folgendermaßen interpretiert werden: Die gemessenen Zeitintervalle dürfen bis zu einem Zeitraum von einem Tag gemittelt werden. Durch die bessere Stabilität der Atomuhr läßt sich damit das weiße Phasenrauschen der SA mitteln, wobei das Zeitintervall mit einer minimalen Unsicherheit von etwa 8 ns nach einem Tag Mittelung bestimmt werden kann. Für längere Mittelungs-Zeiträume dominiert die Phase der Cs-Uhr das Rauschverhalten der Daten. Die optimale Mittelungszeit der Zeitintervalle beträgt aufgrund der erwähnten Periodizität der Rauschamplitude des GPS-Empfängers genau 1 Tag.

Die über 1 Tag gemittelten Daten für den gesamten Beobachtungszeitraum sind in Abbildung D.1 (rechts) gezeigt. Für die Kalibrierung der *Frequenz* der Cs-Uhr ist dabei die *Veränderung* der Intervall-Länge von Bedeutung, d. h. die Steigung einer Anpassungskurve. In unserem Fall wird das Langzeit-Verhalten der Daten innerhalb des Zeitraums der Wasserstoff 1S-2S Frequenzmessungen (MJD 51 235 bis 51 330) gut abschnittsweise durch zwei Anpassungs-Geraden beschrieben. Aus der Anpassung berechnet sich eine relative Frequenzdifferenz von Cs-Uhr und GPS-Zeitsignal von $< 10^{-15}$ für den Zeitraum bis MJD 51 256 und 2.5×10^{-14} , wobei die Frequenz der Cs-Uhr die kleinere ist. Eine Berücksichtigung der Korrektur der GPS-Zeitskala auf die UTC-Zeitskala mit Hilfe der Veröffentlichungen des BIPM läßt die genannten Frequenzdifferenzen innerhalb der angegebenen Genauigkeit unverändert. Aufgrund dieser Kalibration der Frequenz der Cs-Uhr mußten die Ergebnisse der letzten 6 Meßtage der Frequenzmessung des 1S-2S Übergangs um etwa 60 Hz nach unten korrigiert werden. In Abbildung 6.9 ist diese Korrektur schon berücksichtigt. Die Unsicherheit dieser Kalibration muß die unbekannte intrinsische Genauigkeit des GPS-Systems, des Empfängers, sowie eventuelle kontinuierliche Längenänderungen von Kabeln berücksichtigen und kann konservativ mit $< 2 \times 10^{-14}$ abgeschätzt werden (Eintrag in Tabelle 6.1).

Bei den bisherigen Überlegungen war noch nicht der Einfluß der allgemein-relativistischen Zeitdilatation durch das Gravitationspotential in der Höhe unseres Labors von 490 m über dem Geoid berücksichtigt worden. Aufgrund der Definition des Geoids als Fläche gleichen Gravitationspotentials der *rotierenden* Erde auf mittlerer Seehöhe gehen alle auf der Erde ortsfesten

¹Zeitstabilität $\sigma_x(\tau)$ und Frequenzstabilität $\sigma_y(\tau)$ hängen über $\sigma_x(\tau) = \tau \sigma_y(\tau)$ zusammen. Das bedeutet z. B., daß das weiße Frequenz-Rauschen der Cs-Uhr einem „random-walk“-Rauschen der Phase entspricht.

Uhren gleicher Höhe gleich schnell. Daher muß, ungeachtet der geographischen Breite, nur der Beitrag der Höhe h (Rotverschiebung) von $gh/c^2 = 1.1 \times 10^{-16} h/\text{m}$ korrigiert werden [Ash79] ($g = 9.81 \text{ m/s}^2$, Gravitationsbeschleunigung), der bei 490 m Höhe 5.4×10^{-14} beträgt. Da sich Wasserstoff-Spektrometer und Cs-Uhr auf gleicher Höhe befinden, tritt bei diesem Vergleich *keine* gravitative Frequenzverschiebung auf. Die Zeitmarken des GPS-Signals jedoch werden mit einer solchen Frequenz von den Satelliten ausgestrahlt, daß sie für Uhren auf dem Geoid die korrekte Zeit liefern. In einer Höhe über dem Geoid ist das Signal damit rotverschoben, daher ist die Frequenz des GPS-Empfängers gegenüber der Definition der SI-Sekunde zu niedrig. Sämtliche gemessenen Frequenzen müssen daher zusätzlich um 5.4×10^{-14} nach unten korrigiert werden, wie in Tabelle 6.1 angegeben (mit einer Unsicherheit von 10 m in der Höhenbestimmung).

Anhang E

Bei “Physical Review Letters” abgedruckter Artikel

In diesem Anhang ist mit Genehmigung des Verlages einer der im Rahmen dieser Arbeit bei “Physical Review Letters” erschienenen Artikel wiedergegeben:

- Referenz [Rei00]:

Phase Coherent Vacuum-Ultraviolet to Radio Frequency Comparison with a Mode-Locked laser

J. Reichert, M. Niering, R. Holzwarth, M. Weitz, Th. Udem und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **84**, 3232 (2000).

Phase Coherent Vacuum-Ultraviolet to Radio Frequency Comparison with a Mode-Locked Laser

J. Reichert, M. Niering, R. Holzwarth, M. Weitz, Th. Udem, and T. W. Hänsch

Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Straße 1, 85748 Garching, Germany

(Received 18 November 1999)

We demonstrate a versatile new technique that provides a phase coherent link between optical frequencies and the radio frequency domain. The regularly spaced comb of modes of a mode-locked femtosecond laser is used as a precise ruler to measure a large frequency gap between two different multiples (harmonics or subharmonics) of a laser frequency. In this way, we have determined a new value of the hydrogen $1S$ - $2S$ two-photon resonance, $f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187.29(37)$ kHz, representing now the most accurate measurement of an optical frequency.

PACS numbers: 06.30.Ft, 31.30.Jv, 42.60.Fc, 42.62.Fi

Using a new approach to measure the absolute frequency of light with a train of femtosecond laser pulses, we have directly compared the vacuum ultraviolet frequency of the $1S$ - $2S$ interval of atomic hydrogen [1] at 2466 THz ($\lambda = 121.6$ nm) with a 10 MHz reference frequency provided by a commercial atomic cesium clock. We reach an accuracy of 1.5 parts in 10^{13} , surpassing the best previous measurement of the $1S$ - $2S$ frequency [2], and also a recent record breaking measurement of the Ca intercombination line [3] with a traditional harmonic laser frequency chain [4], thus reestablishing the lead of the $1S$ - $2S$ two-photon resonance as the most precisely measured optical frequency in the ultraviolet and visible optical region. A further improvement by an order of magnitude is expected soon when the commercial cesium clock is replaced by a more accurate transportable cesium fountain clock [5].

The hydrogen $1S$ - $2S$ resonance with its natural linewidth of only 1 Hz has long inspired advances in high resolution laser spectroscopy and optical frequency metrology, since it provides an important cornerstone for tests of quantum electrodynamics theory (QED), for measurements of fundamental constants, and even for studies of hadronic structure [6]. In the future, it may reveal possible slow changes of fundamental constants or, with the antihydrogen experiments now under preparation at CERN [7], conceivable differences between matter and antimatter.

Recently, we have demonstrated that the femtosecond pulse train of a Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser can provide a wide comb of precisely equidistant mode frequencies, which can serve as a ruler to measure large optical frequency intervals with unprecedented precision [8,9]. In these experiments, the pulse repetition rate and thus the spacing of the teeth of the frequency comb are electronically phase locked to the radio frequency of a cesium atomic clock which serves as the frequency standard.

Here we demonstrate, for the first time, a new type of laser frequency chain which measures absolute optical frequencies with the help of a femtosecond pulse train. To this end, the interval between two harmonic frequencies of a

laser oscillator is bridged with the new frequency ruler. We also take advantage of the precise bisection of optical frequency gaps with an optical interval divider [10,11]. These new tools will soon replace the large, delicate, complex, and highly specialized harmonic laser frequency chains of the past with compact, reliable, and versatile solid state systems for the measurement and synthesis of optical frequencies. We have experimentally demonstrated a potential accuracy of a few parts in 10^{18} [12] for this new type of laser "clockwork," which is likely to play an important role in future generations of atomic clocks that can now be based on sharp optical resonances in atoms [2], ions [13], or molecules.

The reciprocal relationship between time and frequency implies that a single short pulse has a broad spectral bandwidth. A pulse circulating inside the cavity of a mode-locked laser, however, can be described as a superposition of discrete, well-defined laser modes. The resonator provides a long-term phase memory, so that successive emitted pulses have a high degree of mutual phase coherence. The use of such periodic laser pulse trains for the measurement of optical frequency intervals and for high resolution "Ramsey-type" spectroscopy via multiple coherent interactions had been demonstrated in elementary form more than 20 years ago [14]. Similar ideas have also been discussed by Chebotayev [15]. However, phase coherent absolute frequency measurements, as demonstrated here, would not be possible without the more recent dramatic advances in the technology of ultrafast solid state lasers.

Naively, for a laser cavity with dispersive optical elements, one would expect the mode frequencies to be not precisely equally spaced. As a result, a short pulse circulating inside the cavity would tend to spread and change its shape with time. The Kerr lens produced by the circulating light pulse in a nonlinear optical medium via the intensity dependent refractive index counteracts this tendency by periodically modulating the cavity losses. Each mode is, in fact, injection locked by modulation sidebands of the other modes, and will oscillate in precise lock step, as long as the cavity dispersion is sufficiently well

compensated, so that the mode frequencies do not have to be pulled too far. Modes unable to follow this collective dictate cannot take advantage of the Kerr lens and suffer high round-trip losses in a properly designed cavity.

In the time domain, the output of a mode-locked femtosecond laser may be considered as a continuous carrier wave that is strongly amplitude modulated by a periodic pulse envelope function. If such a pulse train and the light from a cw laser are combined on a photodetector, the beat note between the carrier wave and the cw oscillator is, in fact, observed in a stroboscopic sampling scheme. The detector signal will thus reveal a slow modulation at the beat frequency modulo the sampling rate or pulse repetition frequency.

Of course, the laser spectrum is subject to acoustical and other technical noise. However, in a Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser, this noise can be readily suppressed with the same servo techniques that are normally used to stabilize the frequency of cw lasers. Carrier frequency and pulse repetition rate, i.e., the position and spacing of the frequency comb, can, in fact, be easily controlled independently by changing the phase and group velocity separately [16]. The ability to measure the absolute frequencies of the laser modes implies that we are now able to measure and stabilize the rate at which the carrier phase slips relative to the pulse envelope [16], or the offset frequency that displaces the laser frequency comb from the harmonic frequencies of the pulse repetition rate. The relative phase between carrier and envelope should become important for nonlinear interactions of light pulses that last for only a few optical cycles.

We were initially surprised that the generation of femtosecond pulses in a Kerr-lens mode-locked laser is so highly reproducible that the spectral modes remain precisely equidistant out into the far wings of the spectrum. We have since shown that this remains true even if the laser spectrum is further broadened by self phase modulation in a nonlinear optical fiber [12]. Recently, extreme spectral broadening has been observed with "photonic crystal fibers" [17], which manage the optical dispersion with the help of a microstructured cladding. Meanwhile we have shown [12] that such highly nonlinear fibers can preserve the phase coherence between successive pulses, so that frequency combs spanning more than one octave are becoming available. A compact frequency chain consisting of two lasers only (a frequency doubled Nd:YAG and a femtosecond laser) has already been operated in our laboratory [12]. A high degree of mutual phase coherence has even been observed for pairs of white light continuum pulses produced by focusing the light from an amplified Ti:sapphire femtosecond laser at two separate spots inside a nonlinear medium, despite complications such as self-focusing, stimulated Raman and Brillouin scattering, or shock wave formation [18]. Similar experiments with high harmonics produced in gas jets [19] suggest that it may eventually become feasible to extend absolute optical

frequency measurements into the extreme ultraviolet and soft x-ray region.

To demonstrate the new approach to optical frequency metrology in the most expeditious way, we start with an existing laser frequency chain, as described in detail elsewhere [2], and we introduce a commercial Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser (Coherent, model Mira 900) as an active frequency comb generator to measure two large optical frequency gaps as illustrated in Fig. 1.

Previously, the $3.39\ \mu\text{m}$ CH_4 -stabilized He-Ne laser with its frequency $f \approx 88.4\ \text{THz}$ served as the reference standard. In the new chain, the He-Ne laser acts only as an optical flywheel. The reference standard is now a cesium atomic clock (Hewlett Packard, model 5071A), which controls the repetition rate of the femtosecond laser and thus all the optical frequencies in the chain.

The dye laser for the hydrogen spectrometer operates at a frequency $7f - 2\Delta f$, where the offset $\Delta f \approx 1\ \text{THz}$ posed a major challenge in earlier experiments [2]. As before, we produce the fourth harmonic $4f$ of the He-Ne laser in two frequency doubling steps, using a phase-locked $1.70\ \mu\text{m}$ $\text{NaCl}:\text{OH}^-$ color center laser at $2f$ and an $848\ \text{nm}$ diode laser at $4f$ as transfer oscillators (not shown in Fig. 1). An optical frequency interval divider [11] between f and $7f - 2\Delta f$ generates the precise center frequency $4f - \Delta f$ (oval symbol in Fig. 1). The relatively small interval Δf between $4f$ and $4f - \Delta f$ can now be measured effortlessly with the much broader frequency comb of the mode-locked femtosecond laser.

To measure the absolute optical frequencies, we introduce a $973\ \text{nm}$ diode laser whose second harmonic frequency (generated in a B-cut KNbO_3 crystal) is phase

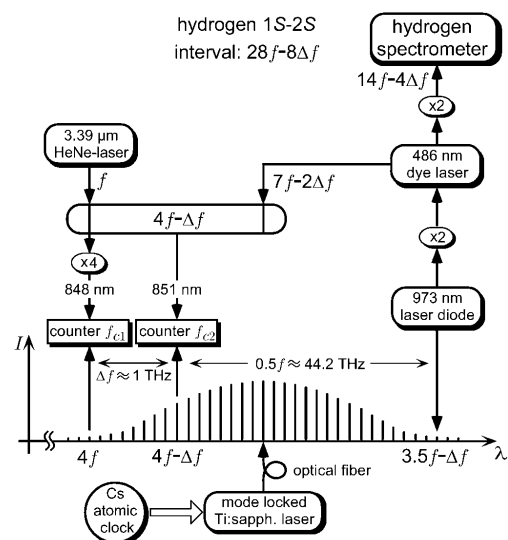


FIG. 1. Novel frequency chain for the measurement of the hydrogen $1S-2S$ interval. The frequency comb of a mode-locked laser is used to measure two large optical frequency differences.

locked to the dye laser, so that it oscillates at the precise subharmonic $3.5f - \Delta f$. By bridging the interval of $0.5f$ between $4f - \Delta f$ and $3.5f - \Delta f$ with the frequency comb of the femtosecond laser, we are, in effect, measuring the frequency f of the He-Ne laser directly in terms of the atomic clock frequency. Since the Mira laser has a rather moderate pulse length of 73 fs, we send its output through a 40 cm long single mode fiber which broadens the spectrum by self-phase modulation so that it bridges the interval of 45.2 THz [12,16].

A single step link between the 45.2 THz interval and the 10 MHz output frequency of the cesium clock is established by stabilizing the 200th harmonic of the pulse repetition rate to a 15.2 GHz signal [16] provided by a microwave synthesizer (Hewlett Packard, model 83623A). The synthesizer is referenced to the cesium clock, which is continuously monitored using a global positioning system (GPS) time receiver (Hameg, model 8125). In addition to the mode spacing, we "fix" the entire comb by stabilizing the beat signal between the dye laser and the second harmonic of the 973 nm laser diode, which is phase locked to a particular mode at $3.5f - \Delta f$. The simultaneous control of the mode spacing and the absolute position of our comparatively narrow frequency comb [16] already enables us to measure any optical frequency between 848 and 973 nm.

All frequency locks in the chain are optical phase-locked loops [20], which control the frequency of one laser, so that the beat frequency with the second laser oscillates in phase with a reference (or local oscillator) frequency provided by our cesium atomic clock. To continuously monitor the performance of these servo loops, we count all in-lock beat signals with radio frequency counters (Hewlett Packard, model HP 53131A) using a different filter bandwidth as used for the phase detectors. In this way, possible cycle slipping events are effectively removed from our data [9].

As shown in Fig. 1, we measure the beat frequencies f_{c1} and f_{c2} at $4f$ and $4f - \Delta f$ with the modes of the comb. To ensure that the beat notes are counted correctly, we use additional laser diodes (not shown in Fig. 1) phase locked to these modes to provide enough power for a strong beat signal (signal to noise ratio ≥ 40 dB in 400 kHz detection bandwidth). In the phase-locked condition, the chain relates the frequency of the hydrogen $1S-2S$ transition ($28f - 8\Delta f$) to the measured radio frequencies f_{c1} and f_{c2} through

$$\begin{aligned} f_{1S-2S} &= -8f_{c1} - 64f_{c2} + (-8N_1 + 64N_2)f_r + f_{LO} \\ &= -8f_{c1} - 64f_{c2} + 2466.063\,84\text{ THz}, \end{aligned} \quad (1)$$

where $N_1 = 595\,351$ and $N_2 = 581\,421$ are the number of modes between the 973 nm laser diode and the modes that produce the measured beat notes, $f_r = 76$ MHz is the pulse repetition rate, and $f_{LO} = 5.504$ GHz contains all contributions from the local oscillator frequencies used for phase locking.

The hydrogen spectrometer has been described in detail previously [21]. The extremely narrow $1S_{1/2}(F=1, m_F = \pm 1) \rightarrow 2S_{1/2}(F'=1, m_{F'} = \pm 1)$ Doppler-free two-photon resonance at 243 nm is driven in a cold atomic beam by a frequency doubled ultrastable dye laser. The UV radiation is resonantly enhanced in a linear cavity inside a vacuum chamber and excites the atoms traveling collinear to this standing wave. At a distance of $l \approx 14$ cm downstream from the beam nozzle atoms that have been excited to the metastable $2S$ state are probed with the help of a quenching electric field that forces the emission of Lyman- α photons. In order to reduce time-of-flight broadening and second order Doppler shifts, we select slow atoms from the thermal beam by turning the laser light periodically off with a chopper and counting signal photons only if they arrive after a time delay of $\tau = 1.2$ ms.

We determine the center of the recorded lines by fitting a Lorentzian to the experimental data. As confirmed by simulations [22], this procedure is sufficiently precise at present if the second order Doppler shift is corrected appropriately. An upper limit for the second order Doppler shift $\Delta\nu = -1/2 (v/c)^2 f_{1S-2S}$ is given by $v = v_{\max} = l/\tau$. A detailed model for the line shape of the resonance [22], however, predicts that for sufficiently long delay times an effective velocity $\bar{v} \approx v_{\max}/2$ gives a realistic estimate for the second order Doppler shift, as the slowest atoms spend the longest time for excitation in the light field. Assuming an uncertainty of 50% in \bar{v} , we correct for a redshift of $1.9 \times 10^{-14} \pm 1.9 \times 10^{-14}$. Averaging the actual particle trajectories in the laser light field, the line shape model [22] yields an ac Stark blueshift of $2.45(5)$ Hz/mW, corresponding to a correction of $-2.7 \times 10^{-13} \pm 1.3 \times 10^{-13}$. The relative uncertainty of 50% in the (linear power-dependent) ac Stark shift is due to a 50% uncertainty in the absolute determination of the light power inside the enhancement cavity. Other uncertainties are estimated to contribute less than 8×10^{-15} [22,23].

During the experiment the dye laser is locked to a stable Zerodur cavity. An acousto-optic modulator (AOM) is used to shift the dye laser frequency relative to the frequency of the light in the cavity, so that the dye laser can be scanned over the atomic resonance. For the data analysis, we first determine the frequency of the light in the cavity with our frequency chain with a counter gate time of one second. The cavity has a superior short term stability so that the phase stability of the frequency chain including its cesium reference (specified Allan standard deviation 5×10^{-12} within one second) can be derived. The measured scatter of cavity frequency readings was reduced by a factor of 10 (to the specified Allan standard deviation of 5×10^{-13} within one second) when we replaced the quartz oscillator at the output of the cesium clock by a quartz with a tenfold improved stability. Thus, with the present radio frequency reference, the frequency chain contributes at a negligible level to the total measurement noise.

To use the cavity, that is drifting at a relative rate of up to 6×10^{-14} per second, as a flywheel in the optical region we fit a third order polynomial to its frequency as a function of time (for periods of usually more than 3 h). This polynomial is used to calculate the absolute frequencies of the $1S$ - $2S$ line centers from the recorded number of emitted Lyman- α photons, the AOM operating frequency, and the recorded time tags. For a typical day of measurement, we obtain about 35 recorded hydrogen spectra and a total of 900 s of measurement data valid for the frequency evaluation of the reference cavity.

Evaluating the data of ten days of measurement, we determine the frequency of the $1S_{1/2}(F=1) \rightarrow 2S_{1/2}(F'=1)$ transition as the weighted mean value of the daily results. The scatter of the one-day mean values of the line centers is due to two statistical effects: the cesium clock instability of 1.5×10^{-13} (specified to less than 2.8×10^{-13}) within 900 s and the statistical uncertainty of around 10^{-13} due to the fitting procedures (polynomials and Lorentzians). For the full ten days of data acquisition, this reduces to a total statistical uncertainty of 5.7×10^{-14} .

We further apply corrections due to small deviations of the GPS time from the universal time, as published by the Bureau International des Poids et Mesures in Paris. In addition, we correct for the gravitational redshift at the site of our laboratory at 490 m above sea level by subtracting 5.3×10^{-14} from the result. We conservatively estimate the uncertainty of this calibration of our cesium clock to be less than 2 parts in 10^{14} .

To account for the well-known hyperfine splittings of the $1S$ and $2S$ levels [24], we add 310 712 223(13) Hz to the result to obtain the $1S$ - $2S$ hyperfine centroid frequency:

$$f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187.29(37) \text{ kHz}. \quad (2)$$

The error budget is dominated by the 1.3×10^{-13} uncertainty of the ac Stark shift and the 5.7×10^{-14} statistical uncertainty of the mean value of the line centers. Both contributions can be reduced significantly if a more stable radio frequency source is used. In this case measurements with different excitation powers can be performed in a reasonable integration time to extrapolate to zero ac Stark shift.

In conclusion, we have performed the first phase coherent radio frequency to vacuum UV comparison to measure the $1S$ - $2S$ transition frequency of atomic hydrogen. The measurement is limited by the short-term stability of our local cesium atomic clock. Together with a new, more accurate value of the proton charge radius [25] and planned precise absolute frequency measurements of hydrogen transitions between excited states with ultracold atoms [26], our measurement will allow more stringent tests of bound-state QED theory.

Even though the reported experiments are based on an existing complex harmonic frequency chain, the techniques introduced here can be applied with reliable and much more compact solid state and semiconductor lasers. This opens for the first time the possibility to construct an optical clock with a clockwork that can continuously work for an extended period of time.

- [1] See, for example, *The Hydrogen Atom*, edited by G.F. Bassani, M. Inguscio, and T.W. Hänsch (Springer-Verlag, Berlin, 1989).
- [2] Th. Udem *et al.*, Phys. Rev. Lett. **79**, 2646 (1997).
- [3] F. Riehle *et al.*, IEEE Trans. Instrum. Meas. **48**, 613 (1999).
- [4] H. Schnatz *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76**, 18 (1996).
- [5] G. Santarelli *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 4619 (1999).
- [6] A. Huber *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 468 (1998).
- [7] J. Eades and F.J. Hartmann, Rev. Mod. Phys. **71**, 373 (1999).
- [8] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T.W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **82**, 3568 (1999).
- [9] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T.W. Hänsch, Opt. Lett. **24**, 881 (1999).
- [10] D. McIntyre and T.W. Hänsch, in Digest of the Annual Meeting of the Optical Society of America, paper ThG3, Washington, D.C., 1988.
- [11] H.R. Telle, D. Meschede, and T.W. Hänsch, Opt. Lett. **15**, 532 (1990).
- [12] R. Holzwarth *et al.* (to be published).
- [13] E. Peik *et al.*, in Proceedings of the 13th European Frequency and Time Forum and the 1999 IEEE International Frequency Control Symposium, Besançon, 1999.
- [14] J.N. Eckstein, A.I. Ferguson, and T.W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **40**, 847 (1978).
- [15] V.P. Chebotayev and V.A. Ulybin, Appl. Phys. B **50**, 1 (1990).
- [16] J. Reichert, R. Holzwarth, Th. Udem, and T.W. Hänsch, Opt. Commun. **172**, 59 (1999).
- [17] W.J. Wadsworth *et al.*, postdeadline paper to the 12th Annual Meeting of the IEEE Lasers and Electro-Optics Society, PD 1.5, San Francisco, 1999; J.K. Ranka, R.S. Windeler, and A.J. Stentz, Opt. Lett. **25**, 25 (2000).
- [18] M. Bellini and T.W. Hänsch, Opt. Lett. (to be published).
- [19] M. Bellini *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 297 (1998).
- [20] M. Prevedelli, T. Freegarde, and T.W. Hänsch, Appl. Phys. B **60**, S241 (1995).
- [21] C. Zimmermann, R. Kallenbach, and T.W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **65**, 571 (1990); F. Schmidt-Kaler *et al.*, Phys. Rev. A **51**, 2789 (1995).
- [22] A. Huber, B. Gross, M. Weitz, and T.W. Hänsch, Phys. Rev. A **59**, 1844 (1999).
- [23] T.C. Killian *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 3807 (1998).
- [24] L. Essen *et al.*, Nature (London) **229**, 110 (1971); J.W. Heberle, H.A. Reich, and P. Kusch, Phys. Rev. **101**, 612 (1956).
- [25] D. Taqqu *et al.*, Hyperfine Interact. **119**, 311 (1999).
- [26] D. Kleppner (private communication).

Literaturverzeichnis

- [Abe98] J. H. Abel, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München (1998).
- [Akh92] S. A. Akhmanov, V. A. Vysloukh und A. S. Chirkin, *Optics of Femtosecond Laser Pulses*, American Institute of Physics, New York (1992).
- [Aki79] Y. K. Akimov *et al.*, Sov. J. Nucl. Phys. **29**, 335 (1979).
- [All66] D. W. Allan, Proceedings of the IEEE **54**, 221 (1966).
- [And93] T. Andreae, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München (1993).
- [Ash79] N. Ashby und D. W. Allan, Radio Science **14**, 649 (1979).
- [Avi86] G. Avila, P. Gain, E. de Clercq und P. Cerez, Metrologia **22**, 111 (1986).
- [Bag97a] S. N. Bagayev, A. K. Dmitriyev und P. V. Pokasov, Laser Phys. **7**, 989 (1997).
- [Bag97b] S. N. Bagayev, I. S. Moskalev, A. Yu. Nevsky und M. N. Skvortsov, *Proc. 1st Conference on Modern Problems of Laser Physics*, P-062, Novosibirsk, 1997.
- [Bal97] A. Baltuška, Z. Wei, M. S. Pshennichnikov und D. Wiersma, Opt. Lett. **22**, 102 (1997).
- [Bar71] J. A. Barnes, A. R. Chi, L. S. Cutler, D. J. Healey, D. B. Leeson, T. E. McGunigal, J. A. Mullen jr., W. L. Smith, R. L. Snyder, R. F. C. Vessot und G. M. R. Winkler, IEEE Trans. Instr. Meas. **IM-20**, 105 (1971).
- [Bar99] A. Bartels, T. Dekorsky und H. Kurz, Opt. Lett. **24**, 996 (1999).
- [Bea86] R. G. Beausoleil, Dissertation, Stanford University, USA (1986).
- [Bea97] B. de Beauvoir, F. Nez, L. Julien, B. Cagnac, F. Biraben, D. Touahri, L. Hilico, O. Acef, A. Clairon und J. J. Zondy, Phys. Rev. Lett. **78**, 440 (1997).
- [Bec00] Th. Becker, H. Walther *et al.*, „In⁺ single-ion optical frequency standard“, zur Veröffentlichung bei Phys. Rev. Lett. vorbereitet.

- [Bel98] M. Bellini, C. Lyngå, A. Tozzi, M. B. Gaarde, T. W. Hänsch, A. L'Huillier und C.-G. Wahlström, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 297 (1998).
- [Bel00] M. Bellini und T. W. Hänsch, *Opt. Lett.* **25**, 1049 (2000).
- [Ber93] Bergmann, Schäfer, *Lehrbuch der Experimentalphysik*, Band 3, „Optik“, Verlag Walter de Gruyter, Berlin (1993).
- [Ber95] D. J. Berkeland, E. A. Hinds und M. G. Boshier, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2470 (1995).
- [Ber99] J. E. Bernard, A. Madej, L. Marmet, B. Whitford, K. Siemsen und S. Cundy, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3228 (1999).
- [Bet77] H. A. Bethe und E. E. Salpeter, *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms*, Plenum, New York (1977).
- [Bra99] M. P. Bradley, J. V. Porto, S. Rainville, J. K. Thompson und D. E. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4510 (1999).
- [Bro94] L. R. Brothers, D. Lee und N. C. Wong, *Opt. Lett.* **19**, 245 (1994).
- [Bou96] S. Bourzeix, D. de Beauvoir, F. Nez, M. D. Plimmer, F. de Tomasi, L. Julien und F. Biraben, *Phys. Rev. Lett.* **76** 284 (1996).
- [Boy91] W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, New York (1991).
- [Cer94] G. Cerullo, S. de Silvestri, V. Magni und L. Pallaro, *Opt. Lett.* **19**, 807 (1994).
- [Cha97] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane und H. C. Kapteyn, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2967 (1997).
- [Che90] V. P. Chebotaev und V. A. Ulybin, *Appl. Phys. B* **50**, 1 (1990).
- [Chr97] I. P. Christov, M. M. Murnane und H. C. Kapteyn, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1251 (1997).
- [Cir] „Circular T“, monatlich herausgeg. vom Bureau International des Poids et Mesures, im Internet veröffentlicht unter:
http://www.bipm.fr/enus/5_Scientific/c_time/time ftp.html
- [Cod87] E. R. Cohen und B. N. Taylor, *Rev. Mod. Phys.* **59**, 1121 (1987).
- [Deh82] H. Dehmelt, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **31**, 83 (1982).
- [Did00] S. Diddams, D. J. Jones, L.-S. Ma, S. T. Cundiff und J. L. Hall, *Opt. Lett.* **25**, 186 (2000).

- [Die96] J. C. Diels und W. Rudolph, *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*, Academic Press, San Diego (1996).
- [Die00] P. Dietrich, F. Krausz und P. B. Corkum, *Opt. Lett.* **25**, 16 (2000).
- [Dre84] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley und H. Ward, *Appl. Phys. B* **33**, 97 (1984).
- [Dri87] W. G. Driscoll und W. Vaughan, *Handbook of Optics* der Optical Society of America, McGraw-Hill, New York (1978).
- [Dzu99] V. A. Dzuba und V. V. Flambaum, „Atomic optical clocks and search for variation of the fine structure constant“, in *Phys. Rev. A* **61**, 034502 (2000) zur Veröffentlichung vorgesehen, im elektronischen Archiv xxx.lanl.gov unter physics/9908047 verfügbar.
- [Ead99] J. Eades und F. J. Hartmann, *Rev. Mod. Phys.* **71**, 373 (1999).
- [Eck78] J. N. Eckstein, A. I. Ferguson und T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 847 (1978).
- [Eic95] M. L. Eickhoff und J. L. Hall, *IEEE Trans. Instr. Meas.* **44**, 155 (1995).
- [Eid95] M. I. Eides und V. A. Shelyuto, *Phys. Rev. A* **52**, 954 (1995).
- [Ess71] L. Essen, R. W. Donaldson, M. J. Bangham und E. G. Hope, *Nature* **229**, 110 (1971).
- [Far95] D. L. Farnham, R. S. Van Dyck Jr. und B. P. Schwinberg, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3598 (1995).
- [Fer82] A. I. Ferguson und R. A. Taylor, *Opt. Commun.* **41**, 271 (1982).
- [Fil94] F. Di Filippo, V. Natarajan, K. R. Boyce und D. E. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1481 (1994).
- [Fis95] B. Fischer, *PTB-Mitteilungen* **105**, 383 (1995).
- [For84] R. L. Fork, O. E. Martinez und J. P. Gordon, *Opt. Lett.* **9**, 150 (1984).
- [Gar79] F. M. Gardner, *Phaselock Techniques*, 2. Edition, John Wiley & Sons, New York (1979).
- [Gar90] J. C. Garreau, M. Allegrini, L. Julien und F. Biraben, *J. Phys. France* **51**, 2263, 2275 und 2293 (1990).
- [Ghe96] S. Ghezali, Ph. Laurent, S. N. Lea und A. Clairon, *Europhys. Lett.* **36**, 25 (1996).

- [Gor84] J. P. Gordon und R. L. Fork, Opt. Lett. **9**, 153 (1984).
- [Grä94] W. H. Heini Gränicher, *Messung beendet - was nun?*, vdf Hochschulverlag AG an der ETH Zürich und Teubner, Stuttgart (1994).
- [Gri89] R. Grimm und J. Mlynek, Appl. Phys. B **49**, 179 (1989).
- [Gro98] B. Gross, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München (1998).
- [Hän74] T. W. Hänsch, M. H. Nayfeh, S. A. Lee, S. M. Curry und I. S. Shahin, Phys. Rev. Lett. **32**, 1336 (1974).
- [Hän89] T. W. Hänsch in: G. F. Bassani, M. Inguscio und T. W. Hänsch (Hrsg.), *The Hydrogen Atom*, Springer, Berlin (1989).
- [Han63] L. N. Hand, D. G. Miller und R. Wilson, Rev. Mod. Phys. **35**, 335 (1963).
- [Heb56] J. W. Heberle, H. A. Reich und P. Kusch, Phys. Rev. **101**, 612 (1956).
- [Her94] J. Herrmann, J. Opt. Soc. Am. B **11**, 498 (1994).
- [Hew97] Hewlett Packard (Herausgeber): D. Allan, N. Ashby und C. Hodge „The Science of Timekeeping“, HP application note 1289 (1997), und „GPS and Precision Timing Applications“, HP application note 1272 (1996).
- [Hol00] R. Holzwarth *et al.*, zur Veröffentlichung vorgesehen.
- [Hub97] A. Huber, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München (1997).
- [Hub98] A. Huber, Th. Udem, B. Gross, J. Reichert, M. Kourogi, K. Pachucki, M. Weitz und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **80**, 468 (1998).
- [Hub99] A. Huber, B. Gross, M. Weitz und T. W. Hänsch, Phys. Rev. A **59**, 1844 (1999).
- [Ima99] K. Imai, B. Widiyatmoko, M. Kourogi und M. Ohtsu, IEEE J. Quantum Electron. **35**, 559 (1999).
- [Jon00] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall und S. T. Cundiff, Science **288**, 635 (2000).
- [Jun95a] P. Jungner, M. L. Eickhoff, S. D. Swartz, J. Ye, J. L. Hall und S. Waltmann, Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng. **2378**, 22 (1995).
- [Jun95b] P. Jungner, S. D. Swartz, M. L. Eickhoff, J. Ye, J. L. Hall und S. Waltmann, IEEE Trans. Instr. Meas. **44**, 151 (1995).

- [Kar97] S. Karshenboim, Z. Phys. D **39**, 109 (1997).
- [Kar99] S. G. Karshenboim, Can. J. Phys. **77**, 241 (1999).
- [Kas97] A. Kasper, Dissertation, Technische Universität München (1997).
- [Kil98] T. C. Killian, D. G. Fried, L. Willmann, D. Landhuis, S. C. Moss, T. J. Greytak und D. Kleppner, Phys. Rev. Lett. **81**, 3807 (1998).
- [Kin78] R. H. Kingston, *Detection of Optical and Infrared Radiation*, Springer, Berlin (1978).
- [Kin96] T. Kinoshita, Rep. Prog. Phys. **59**, 1459 (1996).
- [Kle] D. Kleppner, private Mitteilung.
- [Kni96] J. C. Knight, T. A. Birks, P. St. J. Russell und D. M. Atkin, Opt. Lett. **21**, 1547 (1996).
- [Kön93] W. König, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München (1993).
- [Kot98] F. Kottmann *et al.*, „Laser spectroscopy of the Lamb Shift in muonic hydrogen“, Proposal for an experiment at PSI. R-98-03 (1998).
- [Kou] In Verbindung mit seinen Arbeiten mit elektro-optischen Kammgeneratoren wurde diese Verminderung des Rauschens zuvor schon von M. Kourogi beobachtet (private Mitteilung).
- [Kou94] M. Kourogi, T. Enami und M. Ohtsu, IEEE Photon. Technol. Lett. **6**, 214 (1994).
- [Kou95] M. Kourogi, B. Widyatomoko, Y. Takeuchi und M. Ohtsu, IEEE J. Quantum Electron. **31**, 2120 (1995).
- [Kou96] M. Kourogi, T. Enami und M. Ohtsu, IEEE Photon. Technol. Lett. **8**, 1698 (1996).
- [Kwo93] K. F. Kwong, D. Yankelevich, K. C. Chu, J. P. Heritage und A. Dienes, Opt. Lett. **18**, 558 (1993).
- [Lam47] W. W. Lamb und R. C. Retherford, Phys. Rev. Lett. **72**, 241 (1947), Phys. Rev. Lett. **79**, 549 (1950) und Phys. Rev. Lett. **81**, 222 (1951).
- [Lar93] P. L. Larkins und P. Hannaford, Z. Phys D **27**, 313 (1993).
- [Let77] V. S. Letokhov und V. P. Chebotaev, *Nonlinear Laser Spectroscopy*, Springer-Verlag, Berlin 1977.
- [Lhu93] A. L’Huillier und Ph. Balcou, Phys. Rev. Lett. **70**, 774 (1993).

- [Mal98] S. Mallampalli und J. Sapirstein, Phys. Rev. Lett. **80**, 5297 (1998).
- [McI88] D. McIntyre und T. W. Hänsch, *Digest of the Annual Meeting of the Optical Society of America*, paper ThG3, Washington D.C. (1988).
- [Mer96] P. Mergell, U. G. Meißner und D. Drechsel, Nucl. Phys. A **596**, 367 (1996).
- [Mol80] L. F. Mollenauer, R. H. Stolen und J. P. Gordon, Phys. Rev. Lett **45**, 1095 (1980).
- [Mol83] L. F. Mollenauer, R. H. Stolen, J. P. Gordon und W. J. Tomlinson, Opt. Lett **8**, 289 (1983).
- [Mor99] U. Morgner, F. X. Kärtner, S. H. Cho, Y. Chen, H. A. Haus, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow und T. Tschudi, Opt. Lett. **24**, 411 (1999).
- [Nie00a] M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pokasov, Th. Udem, M. Weitz, T. W. Hänsch, P. Lemonde, G. Santarelli, M. Abgrall, P. Laurent, C. Salomon und A. Clairon, Phys. Rev. Lett. **84**, 5496 (2000).
- [Nie00b] M. Niering, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München, in Vorbereitung.
- [Oht92] M. Ohtsu, *Highly Coherent Semiconductor Lasers*, Artech House, London (1992).
- [Pac94] K. Pachucki, Phys. Rev. Lett. **72**, 3154 (1994).
- [Pac96] K. Pachucki, D. Leibfried, M. Weitz, A. Huber, W. König und T. W. Hänsch, J. Phys. B **29**, 177 (1996). Erratum im selben Band, S. 1573.
- [Pau96] G. G. Paulus, W. Nicklich, F. Zacher, P. Lambropoulos und H. Walther, J. Phys. B **29**, L249 (1996).
- [Pei95] E. Peik, G. Hollemann und H. Walther, Phys. Scr. T **59**, 403 (1995).
- [Pei99] E. Peik, J. Abel, Th. Becker, M. Fries, J. von Zanthier und H. Walther, „Towards an Indium Single-Ion Optical Clock“, in *Proceedings of the 13. European Frequency and Time Forum and the 1999 IEEE International Frequency Control Symposium*, Besançon, 1999.
- [Pet97] A. Peters *et al.*, Philos. Trans. R. Soc. London A **355**, 2223 (1997).
- [Pre95a] M. Prevedelli, T. Freearge und T. W. Hänsch, Appl. Phys. B **60**, S241 (1995).
- [Pre95b] J. D. Prestage, R. L. Tjoelker und L. Maleki, Phys. Rev. Lett. **74**, 3511 (1995).

- [Pro92] B. Proctor und F. Wise, Opt. Lett. **17**, 1295 (1992).
- [Pro93] B. Proctor und F. Wise, Appl. Phys. Lett. **62**, 470 (1993).
- [Raf97] R. J. Rafac und C. E. Tanner, Phys. Rev. A **56**, 1027 (1997).
- [Ran99] J. K. Ranka, R. S. Windeler und A. J. Stentz, „Efficient visible continuum generation in air-silica microstructure optical fibers with anomalous dispersion at 800 nm“, *Conference on Lasers and Electro-Optics*, postdeadline paper CPD-8, Baltimore (1999).
- [Rei99] J. Reichert, R. Holzwarth, Th. Udem und T. W. Hänsch, Opt. Commun. **172**, 59 (1999).
- [Rei00] J. Reichert, M. Niering, R. Holzwarth, M. Weitz, Th. Udem und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **84**, 3232 (2000).
- [Ric95] L. Ricci, M. Weidemüller, T. Esslinger, A. Hemmerich, C. Zimmermann, V. Vuletic, W. König und T. W. Hänsch, Opt. Commun. **117**, 541 (1995).
- [Rie99] F. Riehle, H. Schnatz, B. Lipphardt, G. Zinner, T. Trebst und J. Helmcke, IEEE Trans. Instrum. Meas. **48**, 613 (1999).
- [Rul98] C. Rullière, *Femtosecond Laser Pulses*, Springer, Berlin (1998).
- [Rut78] J. Rutmann, Proceedings of the IEEE **66**, 1048 (1978).
- [San99] G. Santarelli, Ph. Laurent, P. Lemonde, A. Clairon, A. G. Mann, S. Chang, A. N. Luiten und C. Salomon, Phys. Rev. Lett **82**, 4619 (1999).
- [Sap90] J. R. Sapirstein und D. R. Yennie, in *Quantum Electrodynamics*, T. Kinoshita (Hrsg.), World Scientific, Singapur (1990).
- [Sch93] C. Schrama, E. Peik, W. W. Smith und H. Walther, Opt. Commun. **101**, 32 (1993).
- [Sch94] O. Schmidt, K. M. Knaak, R. Wynands und D. Meschede, Appl. Phys. B **59**, 167 (1994).
- [Sch95] F. Schmidt-Kaler, D. Leibfried, S. Seel, C. Zimmermann, W. König, M. Weitz und T. W. Hänsch, Phys. Rev. A **51**, 2789 (1995).
- [Sch96] H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle und G. Zinner, Phys. Rev. Lett. **76**, 18 (1996).
- [Sch99] C. Schwob, L. Jozefowski, B. de Beauvoir, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, F. Biraben, O. Acef und A. Clairon, Phys. Rev. Lett. **82**, 4960 (1999).

- [Sim80] G. G. Simon, C. Schmidt, F. Borkowski und V. H. Walther, Nucl. Phys. A **333**, 381 (1980).
- [Spi94] C. Spielmann, P. F. Curley, Th. Brabec und F. Krausz, IEEE J. Quant. Electr. **30**, 1100 (1994).
- [Szi94] R. Szipöcs, K. Ferencz, Ch. Spielmann und F. Krausz, Opt. Lett. **19**, 201 (1994).
- [Taq99] D. Taqqu *et al.*, Hyperfine Interact. **119**, 311 (1999).
- [Tel90] H. R. Telle, D. Meschede und T. W. Hänsch, Opt. Lett. **15**, 532 (1990).
- [Tel96] H. Telle in M. Ohtsu (Hrsg.), *Frequency Control of Semiconductor Lasers*, John Wiley & Sons, New York (1996).
- [Tel99] H. R. Telle, G. Steinmeyer, A. E. Dunlop, J. Stenger, D. H. Sutter und U. Keller, Appl. Phys. B **69**, 327 (1999).
- [Tom84] W. J. Tomlinson, R. H. Stolen und C. V. Shank, J. Opt. Soc. Am. B **1**, 139 (1984).
- [Tre69] E. B. Treacy, IEEE J. Quantum Electron. **QE-5**, 454 (1969).
- [Ude97a] Th. Udem, A. Huber, B. Gross, J. Reichert, M. Prevedelli, M. Weitz und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **79**, 2646 (1997).
- [Ude97b] Th. Udem, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München (1997).
- [Ude98] Th. Udem, J. Reichert, T. W. Hänsch und M. Kourogi, Opt. Lett. **23**, 1387 (1998).
- [Ude99a] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **82**, 3568 (1999).
- [Ude99b] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth und T. W. Hänsch, Opt. Lett. **24**, 881 (1999).
- [Ude00] Th. Udem, J. Reichert, M. Kourogi und T. W. Hänsch, Opt. Lett., zur Veröffentlichung vorbereitet.
- [Vas70] L. S. Vasilenko, V. P. Chebotaev und A. V. Shishaev, JETP Lett. **12**, 122 (1970).
- [Van87] R. S. Jr. Van Dyck, P. B. Schwinberg und H. G. Dehmelt, Phys. Rev. Lett. **59**, 26 (1987).
- [Vul93] V. Vuletić, V. A. Sautenkov, C. Zimmermann und T. W. Hänsch, Opt. Commun. **99**, 185 (1993).

- [Wad99] W. J. Wadsworth, J. C. Knight, A. Ortigosa-Blanch, J. Arriaga, E. Silvestre, B. J. Mangan und P. St. J. Russell, *12th annual meeting of the IEEE Lasers and Electro-Optics Society*, postdeadline paper PD 1.5, San Francisco (1999).
- [Wal75] F. L. Walls und A. De Marchi, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **24**, 210 (1975).
- [Web87] K.-H. Weber und C. J. Sansonetti, *Phys. Rev. A.* **35**, 4650 (1987).
- [Wei90] A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. S. Patel und J. R. Wullert, *Opt. Lett.* **15**, 326 (1990).
- [Wei92] M. Weitz, F. Schmidt-Kaler und T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1120 (1992).
- [Wei94] M. Weitz, A. Huber, F. Schmidt-Kaler, D. Leibfried und T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 328 (1994).
- [Wyn92] R. Wynands, T. Mukai und T. W. Hänsch, *Opt. Lett.* **17**, 1749 (1992).
- [Wyn93] R. Wynands, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München.
- [Xu96] L. Xu, Ch. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec, F. Krausz und T. W. Hänsch, *Opt. Lett.* **21**, 2008 (1996).
- [Yar89] A. Yariv, *Quantum Electronics*, 3rd edition, John Wiley & Sons, New York (1989).
- [You97] B. C. Young, Dissertation, Stanford University (1997).
- [Yu91] N. Yu, W. Nagourney und H. Dehmelt, *J. Appl. Phys.* **69**, 3779 (1991).
- [Zan99] J. v. Zanthier, J. Abel, Th. Becker, M. Fries, E. Peik, H. Walther, R. Holzwarth, J. Reichert, Th. Udem, T. W. Hänsch, A. Yu. Nevsky, M. N. Skvortsov und S. N. Bagayev, *Opt. Commun.* **166**, 57 (1999).
- [Zim90] C. Zimmermann, R. Kallenbach und T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 571 (1990).

Danksagung

Zuallererst danke ich Professor T. W. Hänsch herzlich für die Möglichkeit, an einem bedeutenden und hochinteressanten Experiment arbeiten zu dürfen und dabei sowohl von den hervorragenden Arbeitsbedingungen am Max-Planck-Institut für Quantenoptik als auch von der menschlichen, toleranten, positiven und ideenreichen Atmosphäre in seiner Arbeitsgruppe profitieren zu können.

Besonderer Dank gehört Thomas Udem, der jederzeit zu Rat und Tat bereitstand und dessen große Erfahrung besonders viel zum Gelingen dieser Arbeit beitrug. Von seiner großen Begeisterung für die Physik und das Experimentieren lasse ich mich gerne immer wieder anstecken und seine offene ehrliche Art machte die Arbeit im Labor zu einer echten Zusammenarbeit. Besonders herzlich danke ich Ronald Holzwarth für die schöne Zeit zusammen im Labor und die gute gemeinsame Arbeit, die sich auch oft über lange zusammen durchgearbeitete Meß-Nächte erstreckte. Markus Niering, der ebenso viele Nächte einsam am Wasserstoffspektrometer mit unendlicher Geduld ausharrte, gehört ebenfalls große Anerkennung und Dank. An die gute und kameradschaftliche Zusammenarbeit mit seinen Vorgängern Bruno Gross und Andreas Huber denke ich genauso gerne zurück. Zu Martin Weitz konnte man immer mit einem physikalischen Problem kommen: er hatte Geduld und wußte immer Antwort. Alle haben einen außergewöhnlichen persönlichen Beitrag zum Gelingen der vielen gemeinsamen Projekte beigesteuert!

Gerald Uhlenberg, Kjeld Eikema, Anette Pahl, Michael Mei, Jochen Walz und meiner gesamten Arbeitsgruppe bin ich sehr für ihre fachliche und persönliche Anteilnahme und einfach für eine sehr schöne gemeinsame Zeit zu Dank verbunden.

Unserem Elektroniker Helmut Brückner danke ich besonders für seine immer bereitwillige Unterstützung, besonders für bayerische Flüche über russische Schaltpläne, die dann letztendlich doch die Schaltungen wieder zum Leben erwecken konnten! Unseren Technikern Wolfgang Simon und Charly Linner besonders für ihre Geduld und Bereitwilligkeit, wenn „mal eben schnell“ wieder etwas gemacht werden sollte. Frau Lechner und Gabi Gschwendtner hatten immer Zeit und Ruhe für einen hereinplatzenden Doktoranden, auch wenn eigentlich gerade die Hölle los war, vielen Dank!

Mein großer Dank gilt ebenso allen, mit denen ich in den Jahren bei gemeinsamen Experimenten zusammenarbeiten durfte: Ekkehard Peik, Thomas Becker, Joachim von Zanthier, Sasha Nevsky, Misha Skvortsov, Pierre Lemonde (besonders für seine Hilfe bei meinen unermüdlichen Fragen über Frequenzstabilitäts-Probleme), Michel Abgrall, Giorgio Santarelli, Pavel Po-

kasov, Sasha Dmitriev, Takeshi Ikegami (besonders für den ermöglichten wissenschaftlichen Austausch), Motonobu Kouroggi, Krzysztof Pachucki, Savely Karshenboim, Herrn G. Kramer und Herrn B. Lipphardt.

Ganz besonders herzlich danke ich Ulrike für ihre außerordentliche Geduld und Unterstützung, im Zusammenhang mit meiner Arbeit vor allem für die Ernsthaftigkeit und Mühe beim kritischen Lesen des Manuskripts der vorliegenden Arbeit.

Nicht zuletzt bin ich meinen Eltern sehr dankbar für ihre großartige Unterstützung in jeder nur denkbaren Weise.

Lebenslauf

Jörg Reichert

geb. 13.11.1968 in Ludwigshafen

1975-1979	Grundschule Ludwigshafen
1979-1988	Gymnasium Ludwigshafen
1988	Abitur
1988-1990	Zivildienst
1990-1996	Studium Physik, Universität Heidelberg
1992	Vordiplom in Physik, Vordiplom in Mathematik.
1994-1996	Diplomarbeit am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg: „Untersuchungen zur Frequenzver- dopplung von Diodenlasern bei $\lambda = 652 \text{ nm}$ “
1/1996	Diplom
seit 1996	Promotion an der Ludwig–Maximilians–Universität in München

